

多接合タンデム太陽電池の電気特性の
評価解析法に関する研究

小倉 暁雄

目次

論文要旨

第1章 序論

参考文献

第2章 研究背景と目的

2-1 太陽電池の原理

2-2 多接合タンデム太陽電池

2-3 本研究の目的

参考文献

第3章 多接合タンデム太陽電池における各サブセルの電気特性の新規評価法

3-1 概要

3-2 多接合タンデム太陽電池の基本特性評価法

3-2-1 分光感度測定

3-2-2 Suns-Voc 法

3-2-3 Electro Luminescence (EL) 法

3-3 新規評価法：スペクトル感度-電圧測定法 (SR-V 法)

3-3-1 測定評価の原理

3-3-2 測定系

3-3-3 SR-V 法 I：バイアス光あり

3-3-4 SR-V 法 II：バイアス光なし

3-4 セルパラメータ抽出の計算手法と従来法との比較

3-4-1 自己無撞着によるフィッティング

3-4-2 等価回路モデル

3-4-3 従来法との比較

参考文献

第4章 フィッティングアルゴリズムの構築と検証

4-1 概要

4-2 フィッティングアルゴリズム

4-2-1 非線形最小二乗法 Powell Hybrid 法

4-2-2 フローチャート

4-3 パラメータ抽出 I : バイアス光ありのデータ

4-3-1 プログラムコードの検証

4-3-2 実デバイスの評価と解析

4-3-3 問題点

4-4 パラメータ抽出 II : バイアス光なしのデータ

4-4-1 パラメータ抽出 I との違い

4-4-2 プログラムコードの検証

4-4-3 実デバイスの評価と解析

4-4-4 パラメータ誤差評価

参考文献

第5章 多接合タンデム太陽電池内におけるルミネッセンスカップリングの効果

5-1 概要

5-2 ルミネッセンスカップリング

5-3 従来のルミネッセンスカップリング評価法と課題

5-3-1 直流電流-電圧特性 (DC I-V 特性)

5-3-2 外部量子効率 (EQE)

5-4 改善したモデルによるルミネッセンスカップリングの解析と評価

5-4-1 等価回路モデル

5-4-2 自己無撞着な計算

5-4-3 DC I-V 特性での評価 : カップリング係数

5-4-4 SR-V 法の応用

5-5 変換効率に与える影響に関する考察

参考文献

第6章 結論

業績目録

謝辞

論文要旨

本研究では、単接合太陽電池の限界効率を大きく超える多接合タンデム太陽電池の特性を評価するための新たな実験・計算手法について検討を行った。

近年、III-V 系化合物太陽電池を利用した多接合タンデム太陽電池に注目が集まっている。化合物太陽電池材料は、組成比を調節することでバンドギャップを制御することができる。これを利用して、異なるバンドギャップを持つ太陽電池を多層化し、単接合セルでは熱や透過損失となっていた太陽光エネルギーをより効率よく吸収できるようになる。バンドギャップを最適化した 3 接合タンデム太陽電池では、最大集光下において理論変換効率は 60% 以上に達する。多接合タンデム太陽電池の特性は、構成されるサブセルの電気特性に依存してしまうため、接合数に関係なく各サブセルの最適化が必要不可欠である。その最適化のために、これまでも各サブセルの評価・解析方が提案され、代表的なものが Suns-Voc 法とエレクトロ・ルミネッセンス (EL) 法がある。しかしこれらの方法は、他のサブセルからの影響を考慮していないため、抽出できるパラメータに限りがあることから、改善の余地が残されていた。そこで本研究では、従来の方法よりも優れた評価・解析手法を確立するための研究を行った。

各サブセルの電気特性を抽出するためにスペクトル感度-電圧測定 (SR-V) を行う。この測定方法は、従来より用いられてきた各サブセルのスペクトル感度測定 (外部量子効率: EQE) と似ている。SR-V 測定では、単色光の波長は固定し、外部バイアス電圧を変化させて電流を計測する。この測定を、3 接合タンデム太陽電池であれば計 3 回行って、全てのサブセルの SR-V 特性を取得する。

次に、取得した SR-V 特性に対してカーブフィッティングを行い、電気特性を抽出する。カーブフィッティングには非線形最小二乗法の一つである「Powell の Hybrid 法」を用いた。カーブフィッティングを行う際の最も重要な点は、自己無撞着な計算によってフィッティングを行うことである。SR-V 法によって各サブセル特性を得ることはできるが、それでも対象とするセル以外の影響は少なからず存在するため、ターゲットとするサブセルの純粋な特性とはならない。そこで自己無撞着に計算を行い、各サブセル間の影響を考慮しながらデータ抽出を行うことにより、高精度でデータ抽出を行えるようにした。

実験データへのフィッティングを行う前に、まずフィッティングのプログラムコードが正しく動作することを検証した。検証には 2 接合 Ga(In)As/Ge セルのパラメータを想定し、シミュレーションソフト LTspice 上で各種ダイオードパラメータを設定して計算された SR-V データにフィッティングをかけた。フィッティングを開始した後、設定された真値へ収束するかを確認したところ、全てのパラメータにおいて真値へ向かって収束していくことを確認した。そのプログラムコードを用いて、実験で得られた 2 接合 Ga(In)As/Ge セルの SR-V データへフィッティングをかけた。SR-V データは非常によく一致し、抽出された

各サブセルの電気パラメータを使って暗電流 (Dark I-V) 特性と光電流 (Photo I-V) 特性のシミュレーションをしたところ、こちらも実験値とよく一致したことを確認した。

更にフィッティングの精度を高めるため、SR-V 測定をする際に使われるバイアス光を使用せず、モノクロ光のみを照射して得られる SR-V データを用いてフィッティングを行った。その結果、こちらも実験で得られる SR-V データとよく一致し、Dark I-V 特性・Photo I-V 特性をシミュレーションにより実験値を再現することができた。

以上より、従来まで使用されてきた各サブセルの評価・解析よりも、①サブセル間の影響を考慮する、②抽出するサブセルの電気パラメータの数、という点において優れた手法を確立することができた。また、多接合タンデム太陽電池の評価において通常使われるバイアス光を使用しないで得られる SR-V データに対してもフィッティングが可能であることを示すことができた。この評価・解析手法を用いることで、多接合タンデム太陽電池の素子構造や実際の作製条件にフィードバックをして、特性改善を図ることができるようになると考える。

多接合タンデム太陽電池の評価として従来そこまで使用されてこなかった SR-V 測定法であるが、この測定法を多接合化することで起こるルミネッセンス・カップリング (L-C) 現象の解析・評価することへ更に応用する。この現象は、サブセル間の生成電流の差が大きくなる場合、つまり集光をする際、顕著に現れる。もともと多接合タンデム太陽電池は集光を想定して作製しているので、この現象を詳細に解析することは有益である。

多接合タンデム太陽電池では、バンドギャップの大きいサブセル E_g^H で発光再結合によって生じたフォトンが、バンドギャップの小さいサブセル E_g^L で吸収されるという現象が起こりうる。この現象をルミネッセンス・カップリング (L-C) と呼ぶ。従来、L-C を解析的に評価するために、自己無撞着な計算をせず、更に直列抵抗・並列抵抗の影響を無視して行ってきた。そこで本研究では、フィッティングのために使用してきたプログラムコードを応用して、自己無撞着な計算を行いつつ、直列抵抗・並列抵抗の影響を考慮しながら L-C を評価した。結果、サブセル間の電流差が小さい時には並列抵抗の影響を受け、電流差が大きい時には直列抵抗の影響を受けるということが明らかになり、これまでの L-C 解析に修正が必要であることを示すことができた。更に、フィッティング時に使用した SR-V データを詳細に解析すると、L-C によって生成された電流と上層サブセルでの不完全吸収により生成された電流とを区別することができることを測定とシミュレーションの両方から示すことができた。最後に L-C を考慮した際、集光時の変換効率にどのような影響があるかをシミュレーションによる検証を行った。結果、通常の 1sun ではそこまで大きな変化が見られなかったが、1000 倍に集光した場合は L-C の効果が顕著になり、より変換効率の向上が見られた。

第 1 章

序論

第1章 序論

太陽電池とは、太陽光を直接電気エネルギーに変換する光起電力デバイスである。我々は、世界で消費する年間消費エネルギーの一萬倍に相当するエネルギーを太陽から得ており、太陽電池はそのエネルギーを利用することができる。その無尽蔵と考えられるほどのエネルギーを利用できるが故、太陽電池は再生可能エネルギーの重要なエネルギー源の一つとして考えられている。実際、近年は太陽電池への注力が他の再生可能エネルギーと比べて大きく、2012年だけで新規導入量が3000万kWを超え、累積導入量は約1億kW(100GW)にまで達した^[1]。しかし、他のエネルギー源と比べて常に競争力を保つためには、太陽電池のエネルギー変換効率をより向上させる必要があると同時に、コストも削減することが重要である。

太陽電池は1954年に米ベル研究所のDaryl Chapin, Calvin Fuller, Gerald Pearsonらによって初めて開発された。当時の太陽電池は結晶シリコンであり変換効率も6%程度であったが、人工衛星に搭載することで人工衛星の寿命を大きく延ばすことができるなど、その有用性が示された。そして現在まで研究開発が進めてこられ、今ではShockley-Queisser限界^[2]である約31%の変換効率にまで近づきつつある。この変換効率の限界は、太陽電池に用いる材料のバンドギャップによって一意的に決定される。これは入射光の透過による損失と、熱損失による。これらの問題を解決し、単接合太陽電池での理論変換効率を超えるために提案されたのが、多接合タンデム太陽電池である。多接合タンデム太陽電池とは、複数の異種半導体を、表面電極側より大きなバンドギャップを持つ材料から小さなバンドギャップを持つ材料へと順番に積層させ、これまで熱損失として利用することができなかつた分までを利用して太陽光スペクトルとの整合を高める方式を取っているものである。スペクトル整合を最大にまで高めた無限個のタンデムセルの場合、非集光で理論変換効率は単接合太陽電池を大きく上回り最大68.2%になるとされており、最大集光時では86.8%と試算されている^[3]。そのような極めて高い変換効率を有する多接合タンデム太陽電池だが、使用する材料の関係でコストが問題となっている。そこで、原材料コストを抑えるため太陽光を集光して太陽電池を小面積化する方法が考えられている。現在の世界最高効率は3接合タンデム太陽電池ではシャープ社が44.4%(302倍集光下)^[4]、4接合タンデム太陽電池では独Fraunhofer研が44.7%(297倍集光下)^[5]を達成している。コストの面でも問題にならないよう多接合タンデム太陽電池の変換効率を更に高めるためには、その構成されている各層のセル(サブセル)の品質を高めていく必要がある。

多接合タンデム太陽電池全体の特性は、構成されるサブセルの電気特性に強く依存する。更に、多接合化することで単接合の時には見られなかった現象も生じる。それは各サブセル間での光によるカップリングであり、変換効率にも影響を与える。そこで本研究は、多接合タンデム太陽電池の変換効率を更に向上させるために、各サブセルの電気特性(直列抵抗・並列抵抗・ダイオードパラメータ)を高精度で評価・解析するための手法を確立し、素子構

造の最適化にフィードバックできるようにすることを目的とした。また、光によるカップリング（ルミネッセンスカップリング）現象を厳密に検証する。

本論文は先ず第 2 章で太陽電池の原理について述べる。次に、第 3 章では多接合タンデム太陽電池の各サブセルの評価・解析についてこれまで行われてきた研究について述べ、我々が提案する新規評価法について説明する。第 4 章においては、第 3 章で述べた新規評価法と新しい計算アルゴリズムによって各サブセルの電気パラメータが抽出可能であることを実証する。そして第 5 章において、多接合タンデム太陽電池特有の現象といえるルミネッセンスカップリング現象について述べる。最後に第 6 章で本研究の結論について述べる。

参考文献

- [1] 自然エネルギー白書 2013 Renewables 2013 Japan Status Report
- [2] W. Shockley, and H.J. Queisser, *J. Appl. Phys.* **32** (1961) 510.
- [3] A. De Vos, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **13** (1980) 839.
- [4] T. Takamoto, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Sept. 2013, 18p-M2-1.
- [5] F. Dimroth, M. Grave, P. Beutel, U. Fiedeler, C. Karcher, T. N. D. Tibbits, E. Oliva, G. Siefert, M. Schachtner, A. Wekkeli, A. W. Bett, R. Krause, M. Piccin, N. Blanc, C. Drazek, E. Guiot, B. Ghyselen, T. Salvetat, A. Tauzin, T. Signamarcheix, A. Dobrich, T. Hannappel, and K. Schwarzburg , *Prog. Photovolt: Res. Appl.*; DOI: 10.1002/pip.2475

第 2 章

研究背景と目的

第2章 研究背景と目的

2-1 太陽電池の原理^{[1], [2], [3]}

図 2-1 に大気圏外(AM-0)、及び赤道付近で太陽が真上にある時の地表上(AM-1)の太陽光スペクトルを示す。太陽光は、虹・プリズムなどの現象から分かるように様々な色があり、その色の違いによってエネルギーが異なる。青色はエネルギーが高く、赤色はエネルギーが小さい。高エネルギーの紫外線や青色の光は地球の大気圏を通過する時、空气中に存在する粒子によって散乱される。また、ある特定の波長成分に関しては水蒸気分子などによって吸収される。このようにして我々が住んでいる地上に到達する太陽光のスペクトル分布は、図 2-1 のグレー部分を差し引いた実線で示したものになる。更に太陽光は、その場所の緯度、時間、気象などの状況で様々に変化するので、どれだけ地球の大気を通過したかをはかる大気圏通過空気量(Air Mass : AM)というものを考える。単位としては天頂から垂直に入射する通過空気量を基準にして、これを AM1 とする。例えば、大気圏外では AM-0 であり、春の東京で晴天時の昼下がりの直射日光は AM-1.5(～1.0kW/m²)程度である。

図 2-2 に単接合太陽電池の概念図を示す。太陽電池はダイオードと構造は同じで、図 2-2 の構造は最も一般的なもので、p 型半導体と n 型半導体の接合によって構成されている。ここで、母材量のバンドギャップ E_g 以上のエネルギーを持つフォトンが照射されると、そのエネルギーを吸収することで価電子帯の電子が伝導帯へ励起されて電子・正孔対が生成される。生成されたキャリアは空乏層で生じる内部電界によって電子は n 型領域へ、正孔は p 型領域へ移動し、電流として取り出される。しかし、 E_g 以上のエネルギーはキャリアがフォノンと相互作用して数十 fs から数 ps の非常に短い時間でバンド端に緩和して、熱損失となる。また、 E_g よりも小さいエネルギーのフォトン吸収できずに透過してしまい、キャリア生成がなされない。

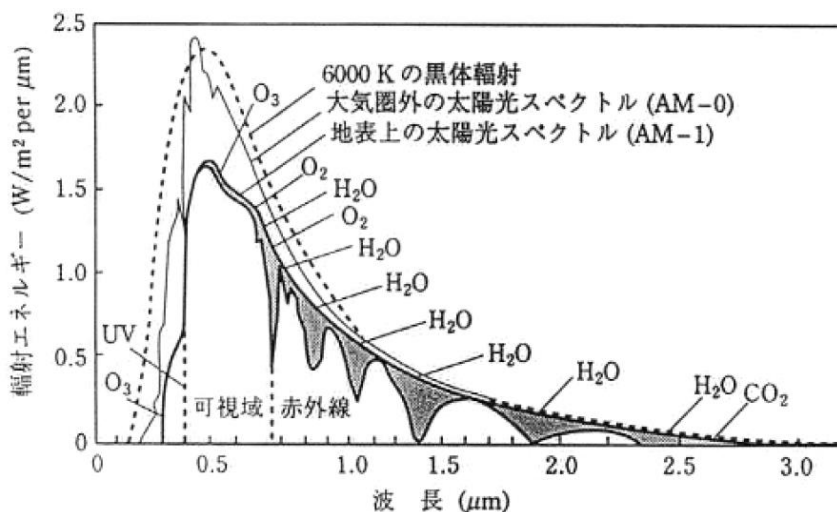


図 2-1 大気圏外(AM-0)及び地表上(AM-1)の太陽光スペクトル^[2]

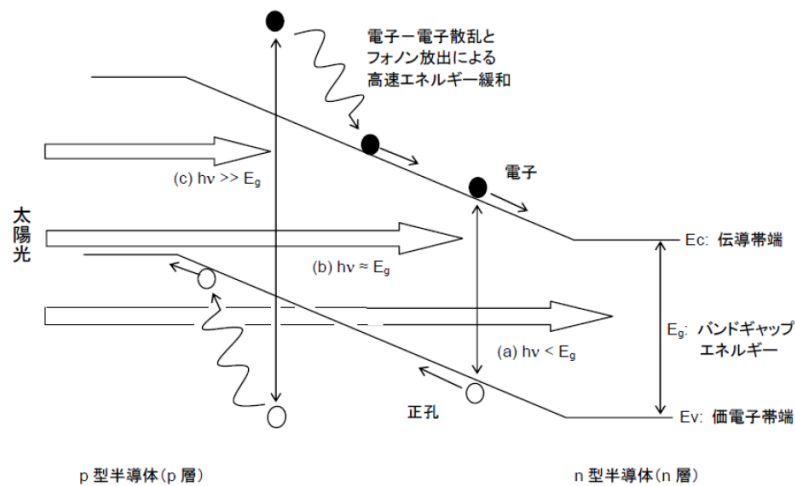


図 2-2 単接合太陽電池の概念図

太陽電池のエネルギー変換効率は、入射太陽光エネルギーと、太陽電池から発生する電力の比をパーセントで表したものである。すなわち、変換効率 η は次式で定義される。^[2]

$$\eta = \frac{\text{太陽電池の電気出力}}{\text{太陽電池に照射された太陽エネルギー}} \times 100 [\%]$$

一般に地上用太陽電池については、太陽放射の条件が AM-1.5 で $100\text{mW}/\text{cm}^2$ という入射光パワーに対して、 25°C で負荷条件を変えた場合の最大電気出力との比を百分率で表した公称効率を効率として用いている。

図 2-3 は単接合型太陽電池の出力特性を示している。 I_{sc} は短絡光電流と呼ばれる。光電流は n 側から p 側に流れるため、太陽電池の電流-電圧特性は、p 側を正として太陽電池の端子電圧を V 、流れる電流を I_{ph} とすれば、

$$I_{ph} = I_0 \left[\exp\left(\frac{qV}{nkT}\right) - 1 \right] - I_{sc}$$

となる。ここで、 I_0 は pn 接合の逆方向飽和電流である。また、 n はダイオード理想因子 ($1 \leq n \leq 2$) であり、 n 値が 1 に近い場合は拡散電流、2 に近い場合は非発光による再結合電流が支配的となる。また、この式で太陽電池を開放状態にすると光電流の大きさに対応した起電力が生じる。これが開放電圧 V_{oc} であり、 $I_{ph} = 0$ (開放状態) を代入すると、

$$V_{oc} = \frac{nkT}{q} \ln\left(\frac{I_{sc}}{I_0} + 1\right) \cong \frac{nkT}{q} \ln\left(\frac{I_{sc}}{I_0}\right)$$

となる。図 2-3 に示すように、太陽電池に最適負荷抵抗 R を接続したときの最大出力点 P は、同図の出力特性で示した V_{max} と I_{max} の交点として表され、図中のグレーの部分で示した面積が出力パワーに相当する。これを一般化して表すと、太陽電池の端子電圧を V 、負荷に流れる電流を I とした場合の出力エネルギー P_{out} は、

$$P_{out} = VI = V \left\{ I_{sc} - I_0 \left[\exp\left(\frac{qV}{nkT}\right) - 1 \right] \right\}$$

となり、 $dP_{out}/dV = 0$ で最大出力になることから、最適動作電流 I_{max} と最適動作電圧 V_{max} はそれぞれ以下のように求められる。(上式の電流は、正になるよう符号を入れ替えてある)

$$I_{max} = I_0 \left(\frac{qV_{max}}{nkT} \right) \exp\left(\frac{qV_{max}}{nkT}\right)$$

$$\cong I_{sc} \left(\frac{1}{1 + nkT/qV_{max}} \right)$$

$$(\because I_{max} \cong I_{sc} - I_0 \exp\left(\frac{qV_{max}}{nkT}\right))$$

$$\cong I_{sc} \left(1 - \frac{1}{qV_{max}/nkT} \right)$$

$$(\because (1+t)^{-1} \cong 1-t \text{ if } t \ll 1)$$

$$V_{max} = \frac{nkT}{q} \ln\left(\frac{1 + \frac{I_{sc}}{I_0}}{1 + \frac{qV_{max}}{nkT}}\right) = V_{oc} - \frac{nkT}{q} \ln\left(1 + \frac{qV_{max}}{nkT}\right)$$

よって、最大出力 P_{max} は次式となる。

$$\begin{aligned} P_{max} &= I_{max}V_{max} \cong I_{sc} \left[V_{oc} - \frac{nkT}{q} \ln\left(1 + \frac{qV_{max}}{nkT}\right) - \frac{nkT}{q} \frac{V_{oc}}{V_{max}} \right] \\ &\cong I_{sc} \left[V_{oc} - \frac{nkT}{q} \ln\left(1 + \frac{qV_{max}}{nkT}\right) - \frac{nkT}{q} \right] \end{aligned}$$

この最大出力パワー P_{max} ならびに V_{oc} 、 I_{sc} が求まると有効受光面積 S (cm^2) の太陽電池の公称変換効率 η_n は次のように求めることができる。

$$\begin{aligned} \eta_n &= \frac{V_{max} \cdot I_{max}}{P_{in} \cdot S} \times 100 [\%] \\ &= V_{oc} \cdot \frac{I_{sc}}{S} \cdot FF \frac{1}{100(\text{mW}/\text{cm}^2)} \times 100 [\%] \\ &= V_{oc}(V) \cdot J_{sc}(\text{mA}/\text{cm}^2) \cdot FF [\%] \end{aligned}$$

ここで、 FF は曲線因子と呼ばれ、

$$FF = \frac{V_{max} \cdot I_{max}}{V_{oc} \cdot I_{sc}}$$

で表され、図 2-3 のグレーの部分の面積を $V_{oc} \cdot I_{sc}$ で割ったものに相当し、太陽電池の性能を示す重要な指数である。

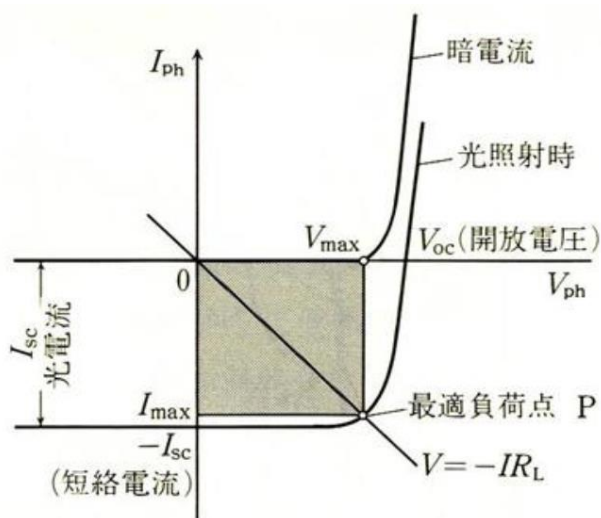


図 2-3 太陽電池の電流—電圧特性^[2]

ここまでは式の変形上、容易に解くことが可能であるということから太陽電池の暗電流として拡散電流と非発光再結合電流の二つをまとめたダイオード理想因子 n の式を用いてきた。しかし本来は、以下のように二つの要素を別々で記述する。

$$J(V) = J_{sc} - J_{diff,0} \left[\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right] - J_{nrad,0} \left[\exp\left(\frac{qV}{2kT}\right) - 1 \right]$$

右辺第二項が拡散電流にあたり、 $J_{diff,0}$ は拡散電流係数を表し、ダイオード理想因子は1である。右辺第三項は非発光再結合電流にあたり、 $J_{nrad,0}$ は非発光再結合電流係数を表し、ダイオード理想因子は2となる。ここでは、電流を面積で割った電流密度の式 $J(V)$ として記述する。上式は、単純な等価回路へと置き換えることが可能である。図 2-4(a)が、太陽電池の理想状態時の等価回路図になる。しかし、実際に動作させる太陽電池の場合は電極の接触抵抗や漏れ電流などの影響もあるため、図 2-4(b)のような回路図で考えなければならない。

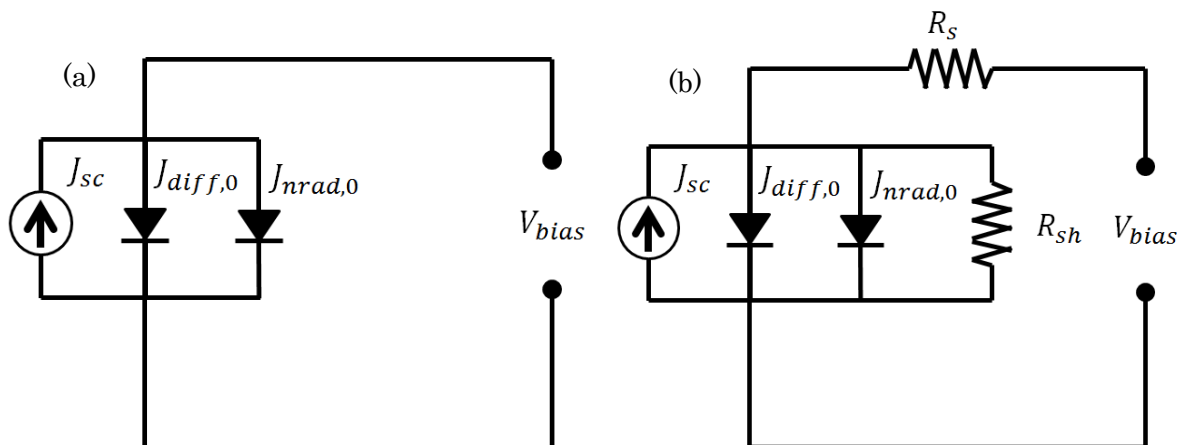


図 2-4 太陽電池等価回路図 (a) 理想状態時、(b) 実デバイス時

すると上式はつぎのような変更を受ける。

$$J(V) = J_{sc} - J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V + J(V) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{nrad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V + J(V) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V + J(V) \cdot R_s}{R_{sh}}$$

両辺に出力電流 $J(V)$ が現れ超越方程式となるため、解析的に解くことが困難になるが、実際には上式を使って計算することになる。

2-2 多接合タンデム太陽電池^{[4], [5]}

これまで単接合太陽電池の原理について述べてきたが、単接合太陽電池の理論変換効率は、III-V族で広く用いられているバンドギャップ約1.4eVを持つGaAsセルの場合、非集光下：約30%、集光下：約37%となっている^[11]。これは2-1節でも述べたが再度記述をすると、①バンドギャップ以上の光子が入射してきたとしても一部は熱エネルギーとして失われる、②バンドギャップ以下の光子は電子を励起することができずに透過する、などが原因となっている。そこで、上記2点の問題を克服するために異種半導体を用いてバンドギャップの異なる太陽電池を幾つも積層した多接合タンデム太陽電池という構造が提案されてきた^[12]。図2-5の右図のような構造とすることで熱損失・透過損失を抑えることができる。

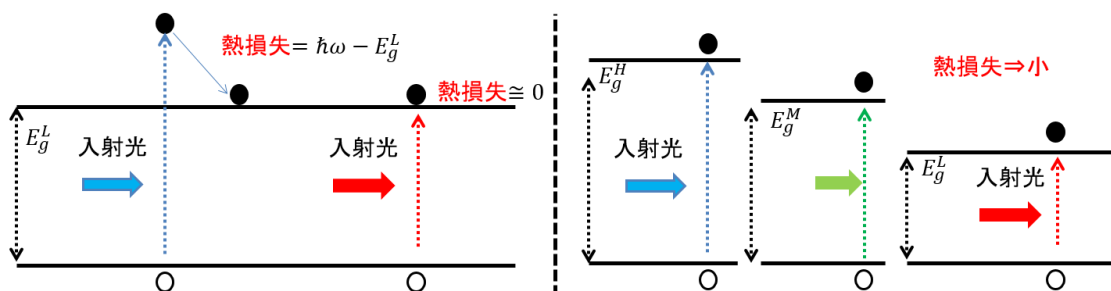


図 2-5 単接合セル（左図）と多接合セル（右図）

この多接合タンデム太陽電池において使用される代表的なものとしてInGaPという材料があるが、この材料は混晶であるため、その組成比を変化させることでバンドギャップの大きさを変えることができる。このような性質により、最適なタンデム構造を実現することができる可能性を有していると言える。変換効率としては、多接合タンデム太陽電池を2接合 $E_g: 1.56\text{eV}/0.94\text{eV}$ とすると、非集光下：42%、集光下：50%、3接合 $E_g: 1.78\text{eV}/1.18\text{eV}/0.94\text{eV}$ とすると非集光下：47%、集光下：56%、という計算がされている。一方実際の太陽電池では、格子不整合系といったInGaP/GaAs/InGaAs構造の3接合タンデム太陽電池をSHARP社が302倍集光下で44.4%を達成^[6]、更に独Fraunhofer研が4接合タンデム太陽電池を297倍集光下で44.7%を達成する^[8]など、変換効率の向上にしのぎを削る研究が行われており、効率50%に達しようとしている（図2-6参照）。そのような多接合タンデム太陽電池の特徴を以下、幾つか述べる。

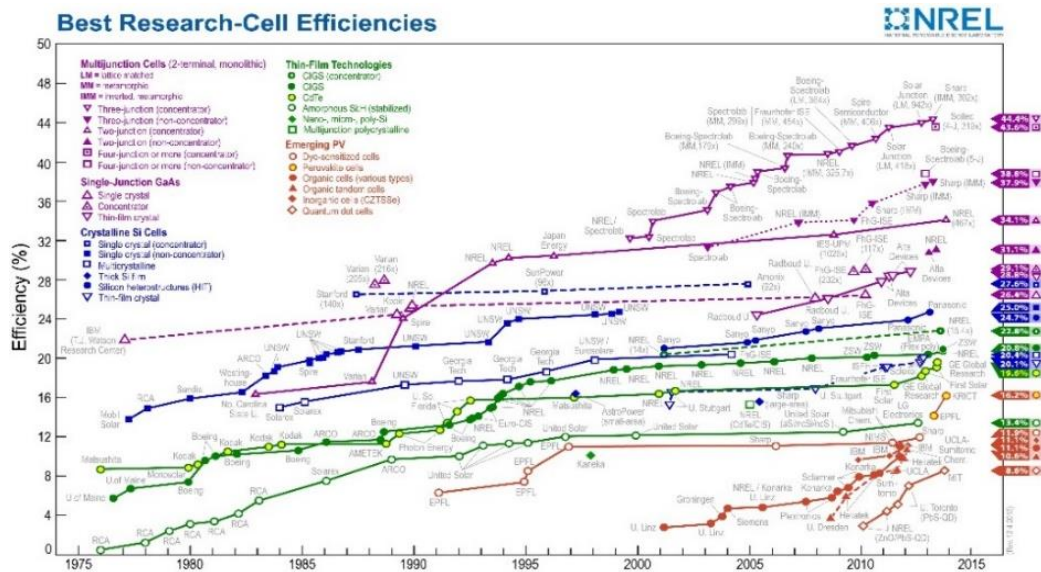


図 2-6 変換効率の年代推移⁸⁾

多接合タンデム太陽電池の最も重要な性質として、電流整合（電流律速）があげられる。この性質について図 2-7 を用いて説明する。

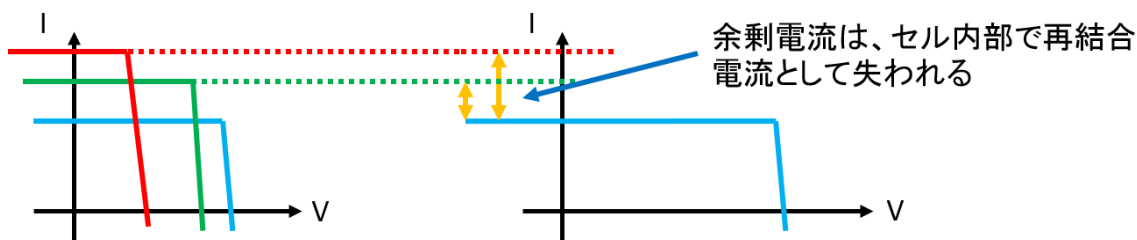


図 2-7 電流整合について

図 2-7 は 3 接合タンデム太陽電池を想定しており、左図はその各サブセルに光を照射した時に得られる電流－電圧特性を示している（多接合化をすると、このように各サブセルの電流－電圧特性は本来記述することができないが、ここでは分かっていると仮定をして記述している）。赤がボトムセル、緑がミドルセル、青がトップセルとした場合、トップセルの電流値が一番小さいため 3 接合セルの電流電圧特性を測定した時は右図のようにトップセルの短絡電流に電流が律速される。電圧は各サブセルの合計値となる。このようにして電流が決定されるため、他のサブセルで生成された余剰電流は全てそのセル内部で再結合電流として失われてしまう。この電流の大小関係は、作製するセルの構造によって変わるため、使用する状況によってセル構造を最適化する必要がある。

次に多接合セルの各サブセルをつなぎ合わせているトンネルダイオードである。トンネルダイオードの存在により各サブセル間でキャリアの移動が起こり全体として電流を流すことができる。トンネルダイオードに求められる特性としては、電気的に低抵抗であり直列抵抗が小さいこと、トンネルピーク電流密度が太陽電池の短絡電流密度よりも十分に大き

いこと、また更に上部セルが吸収せずに透過してきた光に対して透明であるために高エネルギーバンドギャップ材料であること、などがあげられる。トンネルダイオードは通常キャリア濃度を高くすることで、トンネルピーク電流密度を向上させている。

最後にどのようなバンドギャップの材料を組み合わせるのか、という点である。図 2-8 は代表的な 3 接合タンデム太陽電池のバンドギャップの組み合わせと格子定数の変化について示している。現在主流の格子整合系 3 接合構造 (Lattice-Match : LM 構造) では、主にボトムセルとして Ge を使用しており、Ge はバンドギャップが小さいことから、ボトムセルが生成する電流はトップセル・ミドルセルの電流よりも非常に大きくなり、出力される電流はトップセルもしくはミドルセルのどちらかで律速される。この構造の場合、出力される電流のバランスがうまくとれていないことから最適なバンドギャップの組み合わせとは言えない。

更なる高効率化を図るためには、各サブセルが生成する電流のバランスをマッチングさせることが必要であることから、様々な方法が提案されてきた。その方法として、3 接合構造において、トップセル・ミドルセルのバンドギャップを低下させた順積みの格子不整合系 (Lattice-MisMatch : MM 構造) や、ボトムセルのバンドギャップを増加させた逆積みの格子不整合系 (Inverted-MetaMorphic : IMM 構造) が挙げられる。いずれの方法にしてもこれまで盛んに研究・開発が行われてきた LM 構造セルと比較して変換効率において 3~5%程度の向上を期待されているが、格子不整合セルをどれだけ品質良く作製できるかが今後の重要な課題となっている。

MM 構造の 3 接合では、順積みであるためこれまで同様 Ge ボトムセル基板上に $\text{In}_{0.17}\text{Ga}_{0.83}\text{As}$ ミドルセル、 $\text{In}_{0.65}\text{Ga}_{0.35}\text{P}$ トップセルの順序でエピタキシャル成長させるため、ボトムセルとミドルセルの間に格子定数を増加させるためのバッファ層が必要となる。バッファ層があることで急激な格子定数の変化を緩和することができ、貫通転位のようなセル品質を劣化させるようなものを閉じ込めることができる。

IMM 構造の 3 接合セルを実現するためには、図 2-9 に示すような逆方向エピタキシャル成長が必要となる。通常とは逆の順序で成長を行うことにより、3 接合セルの発電効率において特に重要なトップセル・ミドルセルを高品質で成長させることできる。このような技術を利用して SHARP 社が作製した 3 接合セルは、非集光下において 35.8%の変換効率という世界最高効率を達成している (図 2-10 参照)。

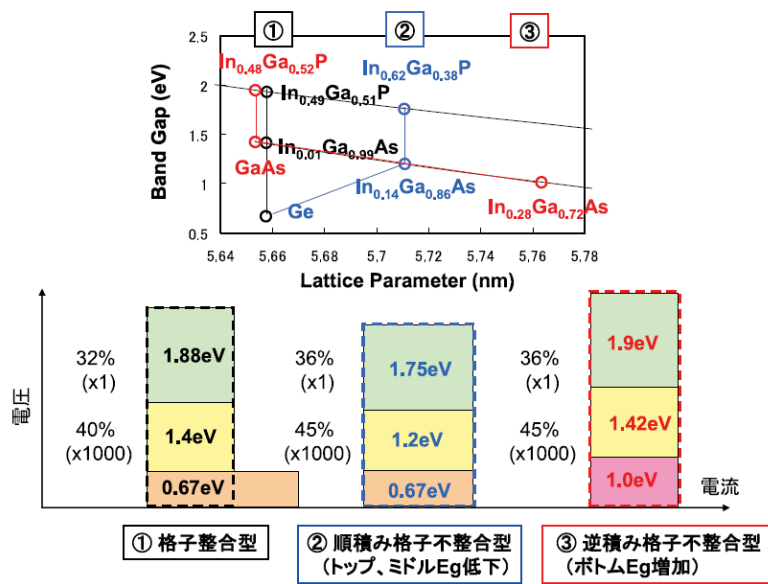


図 2-8 代表的な 3 接合タンデム太陽電池のバンドギャップの組み合わせと格子定数の変化

(下図は縦軸：電圧、横軸：電流をそれぞれ表す) [9], [10]

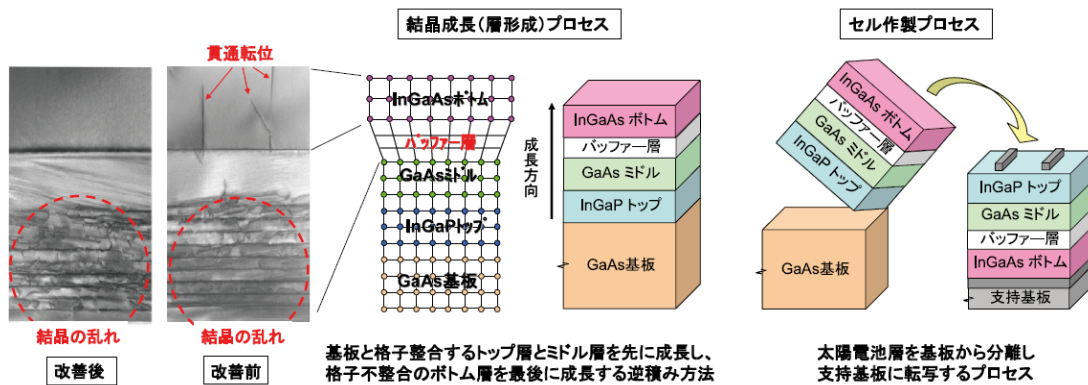


図 2-9 IMM 3 接合タンデム太陽電池の作製プロセス [9], [10]

I-V CURVE
IEC60904-3Ed.2 0.880 cm² (aperture area) WHSS

Date : 2 Sep 2009

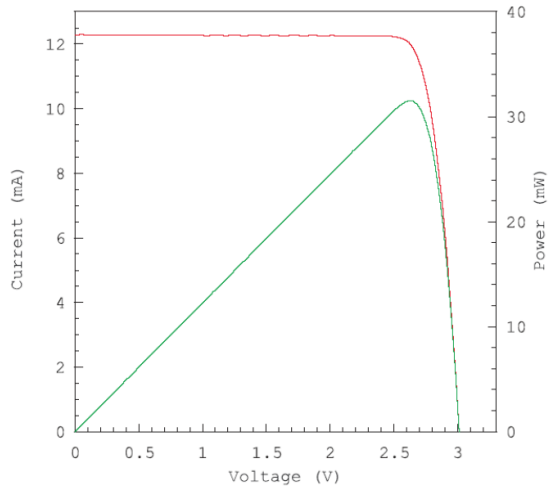
Data No :

sc9112-01

Sample No :

sc9112

Repeat Times : 9



Isc 12.27 mA
Voc 3.012 V
Pmax 31.54 mW
Ipmax 12.05 mA
Vpmax 2.617 V
F.F. 85.3 %
Eff (ap) 35.8 %
DTemp. 25.0 °C
MTemp. 25.0 °C
DIrr. 100.0 mW/cm²
MIrr. 100.3 mW/cm² (top)
100.3 mW/cm² (middle)
100.4 mW/cm² (bottom)

Scan Mode
Isc to Voc

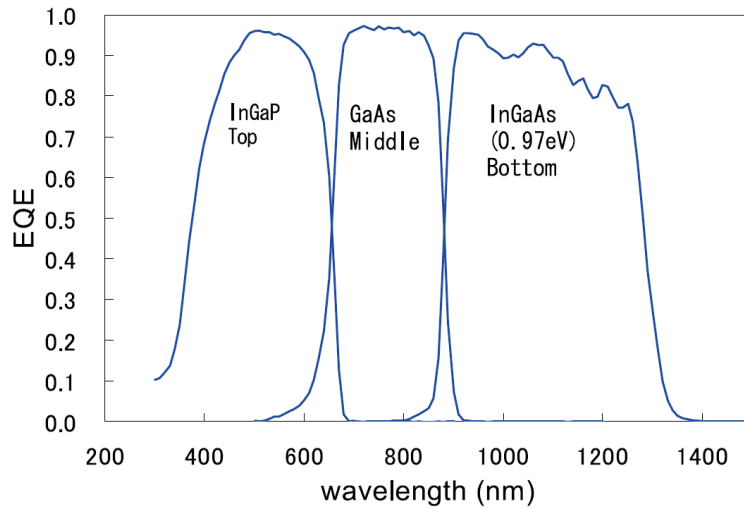


図 2-10 35.8% (非集光での世界最高効率) を達成した逆積み格子不整合型 3 接合タンデム太陽電池の電流—電圧特性 (産業技術総合研究所で測定) および分光感度特性^{[9], [10]}

2-3 本研究の目的

多接合タンデム太陽電池の理論変換効率は単接合太陽電池のそれよりも大きいため、集光動作による低コスト化を図れば、トータルコストを単接合太陽電池と同程度、もしくはそれよりも小さく抑えることが可能とされている。そのための絶対条件として、多接合セルの変換効率を今後更に高めていく必要がある。前節で述べたように、多接合セルは各サブセルの起電圧の和、また電流律速条件などによって特性が決定されるため、各サブセル特性の良し悪しにより変換効率が変化する。ゆえに、多接合セルの更なる変換効率の向上のためには各サブセルの特性を改善する必要がある。各サブセルの特性を改善するためには、それらの特性を正しく評価しなければならない。これまでも多くの研究がなされ、各サブセル特性を評価・解析してきたが、厳密な評価には至っておらず、更なる改善点が存在している。また多接合セル特有の各サブセル間の電氣的なカップリングだけでなく、光によるカップリング効果についてもより詳しく評価・解析する必要がある。

そこで本研究は、各サブセル特性を正しく評価・解析するためのこれまでにない新しい実験・解析手法を提案し、実際に各サブセルの電気特性を評価する。更に、各サブセル間で生じる光によるカップリング（ルミネッセンスカップリング）効果についても実験とシミュレーションにより解析し、多接合セルに与える影響を考察する。

参考文献

- [1] 濱川圭弘, 桑野幸徳共編, 太陽光エネルギー工学, 培風館(1994).
- [2] 濱川圭弘, 太陽電池 フォトニクスシリーズ 3, コロナ社(2004).
- [3] 大島隆治, 希釈窒化物混晶半導体量子ドットの作製とデバイス応用に関する研究, 2007年 筑波大学博士論文.
- [4] 山口真史, 高効率太陽電池の開発と応用, シーエムシー出版 (2009).
- [5] 和田隆博, 化合物薄膜太陽電池の最新技術, シーエムシー出版 (2007).
- [6] T. Takamoto, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Sept. 2013, 18p-M2-1.
- [7] F. Dimroth, M. Grave, P. Beutel, U. Fiedeler, C. Karcher, T. N. D. Tibbits, E. Oliva, G. Siefert, M. Schachtner, A. Wekkeli, A. W. Bett, R. Krause, M. Piccin, N. Blanc, C. Drazek, E. Guiot, B. Ghysselen, T. Salvetat, A. Tauzin, T. Signamarcheix, A. Dobrich, T. Hannappel, and K. Schwarzburg , Prog. Photovolt: Res. Appl.; DOI: 10.1002/pip.2475.
- [8] NREL Best research cell efficiency; <http://www.nrel.gov/ncpv>.
- [9] 佐々木和明、高本達也, 化合物太陽電池, KEC 情報 No.215 (2010).
- [10] 高本達也, 化合物太陽電池, シャープ技報 第 100 号・2010 年 2 月.
- [11] G. L. Araujo and A. Marti, Sol. Energ. Mat. Sol. C. **33** (1994) 213.
- [12] C. H. Henry J. Appl. Phys. **51**, 4494 (1980).

第 3 章

多接合タンデム太陽電池における 各サブセルの電気特性の評価法

第3章 多接合タンデム太陽電池における各サブセルの電気特性の評価法

3-1 概要

多接合タンデム太陽電池の理論変換効率は非常に高くなるが、実際にその効率に近づくためにグリッドデザインの最適化、構成されている各サブセルの特性を正しく評価し何を改善すべきなのか等、明確にしなければいけない点が多い。

その多接合タンデム太陽電池の評価は、単接合太陽電池の場合とは異なる注意が必要とされる。例として本論文において何度も述べる分光感度測定と電流-電圧測定の2つをあげて説明する。これらは各サブセルの特性を評価するうえでは非常に基本的な測定法になる。また各サブセルの特性を評価するためこれまでに提案されている方法を2つあげ、その評価原理を概観し、改善すべき点を述べる。その後、従来にはない新しい測定法によって各サブセルを評価する原理を述べる。

3-2 多接合タンデム太陽電池の基本特性評価法

3-2-1 分光感度測定

分光感度測定は単接合太陽電池においても一般的に用いられる評価法である。分光感度とは太陽電池の特定波長(λ)における、入射光強度(W)と出力電流値(A)の比になる。値は以下の式で表される。

$$Q(\lambda) = \frac{J_{out}(\lambda)}{W_{in}(\lambda)}$$

$Q(\lambda)$: 分光感度(A/W)、 $J_{out}(\lambda)$: 出力電流(A/cm²)、 $W_{in}(\lambda)$: 照射強度(W/cm²)、 λ : 波長(nm)

もう1つの評価尺度として、量子効率(Quantum Efficiency: QE)というものがある(外部量子効率(External Quantum Efficiency: EQEとも呼ばれる)。量子効率とは、太陽電池単位面積当たり毎秒吸収された光子に対して何個の電子を発生させるかを比率(%)で示した値になる。量子効率は、以下の式で分光感度と結び付けられる。

$$\begin{aligned} QE &= \frac{J_{out}(\lambda)}{\frac{e}{h\nu}} \times 100 \\ &= \frac{J_{out}(\lambda) hc}{W_{in}(\lambda) \lambda e} \times 100 \\ &= Q(\lambda) \frac{hc}{\lambda e} \times 100 [\%] \end{aligned}$$

入射光子数： $\frac{W_{in}(\lambda)}{h\nu}$ 、出力電子数： $\frac{J_{out}(\lambda)}{e}$ 、 h ：プランク定数、 e ：電荷素量、 c ：光速

一般的には、分光器によって光源から設定した波長ごとに取り出した単色光を太陽電池に照射する。その時の出力信号を測定することにより分光感度を計算する。その際、外部バイアスは 0V に設定をしておく。単接合太陽電池であれば暗状態のセルに対して単色光を照射して電流を計測すればよいので、非常に容易である。しかし多接合タンデム太陽電池の各サブセルを測定する場合、単接合太陽電池とは少し異なる手法によって計測を行う。先ず多接合タンデム太陽電池を測定する際に注意すべき点は、各サブセルが直列に接続されているので、出力として計測される電流は生成電流が最も小さいセルに律速されるということである。つまり、3 接合セルでボトムセルの生成電流が 0 であれば、他のサブセルがどれだけ電流を生成していたとしても出力される電流は 0 となる。この電流律速条件を考えて各サブセルを評価しなければならない。

仮に 3 接合タンデム太陽電池の各サブセルを評価したいとする。サブセルの中でボトムセルを測定したいときはボトムセルに電流律速をかける必要があるため、トップセル・ミドルセルの吸収波長領域であるカラーバイアス光を照射し、通電状態にする。ボトムセルは暗状態、もしくはトップセル・ミドルセルが生成している電流よりも小さくなるようなカラーバイアス光を照射した状態にしておく（通常は暗状態にして測定を行う）。上記状態にしてから単色光を照射して分光感度の測定を行う。トップセル、ミドルセルの測定を行う場合も、電流律速を測定対象サブセルにかけて行えばよい。多接合の場合、もう一点、光源の照射条件だけでなく外部バイアスの値をどう決定すればよいか、ということに注意する必要がある。単接合太陽電池の場合は外部バイアスを 0V にし、短絡電流のポイントで分光感度計測を行う。多接合でもこの条件と一致させた状態で計測を行うとなると、外部バイアスを単純に 0V にしただけでは、測定対象のサブセルが 0V になっているかという、異なる電圧がかけられていることがある。各サブセルに対してカラーバイアス光を照射せず、全てのサブセルが暗状態であれば外部バイアスが 0V の時、各サブセルにかけられている電圧は 0V となる。しかし、あるサブセルに対してカラーバイアス光を照射すると、そのサブセルは光起電力により電圧を生じる。そのため、仮に外部電圧 0V にすると、光を照射されているサブセルの動作点は開放電圧 (V_{top} , V_{middle}) となる。それに対して暗状態のセルは、外部バイアスが 0V になるような動作点とならなければいけないため、 $V_{top} + V_{middle} + V_{dark} = 0$ より、 $V_{dark} = -(V_{top} + V_{middle})$ つまり、逆バイアスがかけられている状態になる。これでは、測定対象のサブセルが 0V となっていないため測定としては不適となる。このように、測定対象サブセルが 0V になるような外部バイアスを設定する必要があるため、多接合の測定を行う際、注意をしなければならない。

3-2-2 Suns-Voc 法^[1]

Suns-Voc 法とは元々、単接合太陽電池を評価するために用いられてきた手法であるので、先ず単接合太陽電池の場合における測定方法を示す。

Suns-Voc 法は、太陽電池に照射する光強度を可変し、その都度、短絡電流 (Jsc) と開放電圧 (Voc) を測定する。測定概念図を図 3-1 に示す。測定したデータを Jsc-Voc としてプロットし、そのカーブより太陽電池等価回路のダイオードパラメータを抽出することができる (測定するデータが短絡電流 (Jsc) より、Suns-Voc 法は別名 Jsc-Voc 法と呼ばれることもある)。等価回路モデルによる電流-電圧特性は、

$$J(V) = J_{ph} - J_0 \left\{ \exp \left[\frac{q(V+JR_s)}{nkT} \right] - 1 \right\} - \frac{V+JR_s}{R_{sh}}$$

で与えられるが、Suns-Voc 法では開放電圧 (Voc) を測定しているので、先ず Jsc を求める。Jsc は V=0 時の電流より、上式に V=0、J(V)=Jsc を代入すると

$$J(V=0) = J_{sc} = J_{ph} - J_0 \left\{ \exp \left[\frac{qJ_{sc}R_s}{nkT} \right] - 1 \right\} - \frac{J_{sc}R_s}{R_{sh}}$$

となる。次に J(V)=0 時の V=Voc を求めると、

$$0 = J_{ph} - J_0 \left\{ \exp \left[\frac{qV_{oc}}{nkT} \right] - 1 \right\} - \frac{V_{oc}}{R_{sh}}$$

となる。上式を Jph について解き、Jsc の式へ代入すると、

$$J_{sc} = J_0 \left\{ \exp \left[\frac{qV_{oc}}{nkT} \right] - 1 \right\} + \frac{V_{oc}}{R_{sh}} - J_0 \left\{ \exp \left[\frac{qJ_{sc}R_s}{nkT} \right] - 1 \right\} - \frac{J_{sc}R_s}{R_{sh}}$$

が得られる。この式が、Suns-Voc 法で得られる Jsc-Voc 特性の式となる。Jsc と Voc は照射する光強度の関数となっている。Jsc・Rs が Voc よりも小さい時、上式は下式へ変形することができる。

$$J_{sc}(Intensity) = J_0 \left\{ \exp \left[\frac{qV_{oc}(Intensity)}{nkT} \right] - 1 \right\} + \frac{V_{oc}(Intensity)}{R_{sh}}$$

これは、ダイオード等価回路モデルの直列抵抗を除いた特性であり、暗電流特性そのものである。異なる点は、短絡電流 (Jsc) と開放電圧 (Voc) が光強度の関数となっていることである。通常の暗電流特性と Suns-Voc 法によって得られる Jsc-Voc 特性を同じグラフで表したものを図 3-1 に示す。共に LTspice によって得られたデータである。図より明らかなように、暗電流特性の方が Suns-Voc 法よりも早く直列抵抗の影響を受けて飽和していることが分かる。Suns-Voc 法で飽和する理由は、Jsc-Voc 特性の式に Rs の効果がまだ残っているためである。

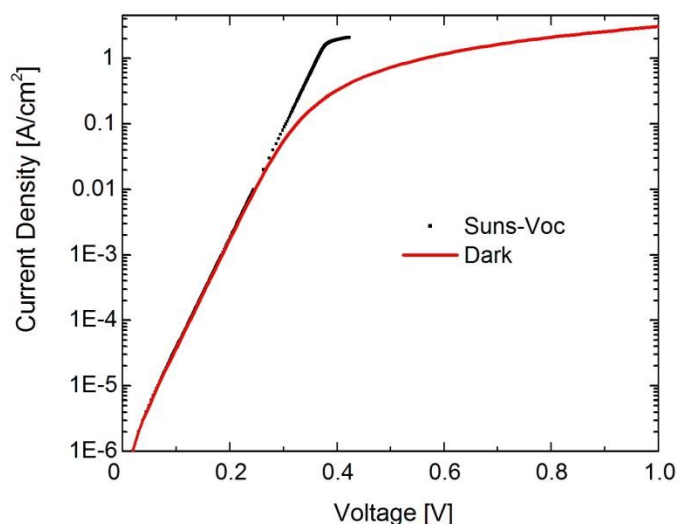
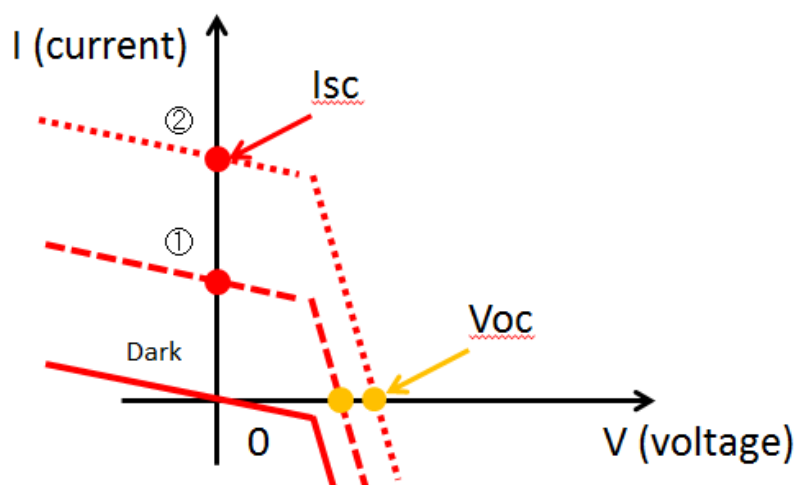


図 3-1 測定概念図、暗電流特性と Suns-Voc との違い

この測定方法を応用して、多接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気特性を評価する。ここでは仮に、2 接合太陽電池のボトムセルの特性を評価したいとする。多接合の場合、測定対象となるサブセルに電流律速をかけなければいけないので、トップセルに対して高強度のバイアス光を照射し、トップセルは通電状態にする。トップセルへ照射するバイアス光の強度は固定しておく。またこの時、ボトムセルは暗状態である。この状態であればボトムセルに電流律速がかかるため、ボトムセルの特性を評価することができる。そこで Suns-Voc 法を応用し、ボトムセルに対して照射するバイアス光の強度を可変しながら、電流と電圧を測定していく。測定概念図を図 3-2 に示す。ここで、電流と電圧はどのポイントで測定すればいいのかが問題となる。測定しなければならないのは、ボトムセルの短絡電流 (J_{sc}) と開放電圧 (V_{oc}) であるが、その測定方法について図 3-3 を使って説明する。左図が、仮に

各サブセルの電流—電圧特性が分かっていたとしたときのグラフである。トップセルへは高強度のバイアス光を照射しているため、非常に大きな電流 (J_{sc}) が生成されている。またここでは理想的な例として、トップセルのフィルファクターが 100%であると仮定する。ボトムセルへは強度を可変していくので幾つかの電流—電圧特性がある。これらトップセルとボトムセルの電流—電圧特性を合成 (重ね合わせ) したものが、我々測定側が知りえる電流—電圧特性となる。それを示したものが右図になる。右図で測定するポイントは、電流 (J_{sc}) は●であり、電圧 (V_{oc}) は●と $V=V_{oc}(\text{Top})$ との差分である。この理由は、ボトムセルが暗状態時の時は $I(V)=0, V=0$ より (左図参照)、右図の①のポイントが、ボトムセルの $I(V)=0, V=0$ に対応するため、ボトムセルへ照射するバイアス光の強度を可変したときにこのポイントからどれだけ変化したかを見ればボトムセルの短絡電流 (J_{sc}) と開放電圧 (V_{oc}) を知ることができるためである。しかしこれはトップセルのフィルファクターが 100%という仮定の下でしか成立しない。何故なら、トップセルの電流—電圧特性は図 3-4 で示したような形状になるためである。よって、右図①のポイントの電圧から②、③は僅かに変化してしまう。更に、この電圧シフト量は定量的に知り得ることが出来ないため、短絡電流 (J_{sc}) を正確に測定することが出来なくなる (ただし、図からも明らかなように開放電圧 (V_{oc}) の測定には影響しない)。このため、Suns-Voc 法を適用して各サブセルの特性を抽出したとしても、僅かに誤差が生じる恐れがある。

トップセルに対して高強度のバイアス光を照射しているため、この僅かな電圧シフト量はほぼ無視することができ、ほぼ理想状態でボトムセルの特性を評価することができる可能性が残る。しかし高強度のバイアス光を照射してしまうと第 5 章でも述べるがサブセル間同士でルミネッセンスカップリングを起こしてしまい、ボトムセルが発電をしてしまう。つまり、初期状態であったボトムセルの暗状態を得ることが出来なくなる。これは図 3-5 で示してあるように、既にカップリング効果によってボトムセルが発電をしているため、その電流に応じた電圧を生じてしまう。このため、測定するポイントが本来は右図の●であるのだが、●となってしまう。この電圧シフト量はカップリング効果によって生じた電流を定量的に見積もらなければ計算することができないため、ほぼ求めることはできない。よって、高強度のバイアス光を照射したとしても各サブセルの特性を正確に抽出することはできないことになる。

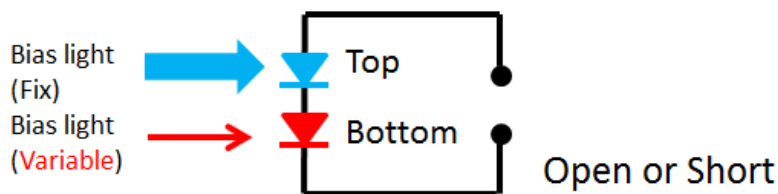


図 3-2 多接合の場合での測定概念図

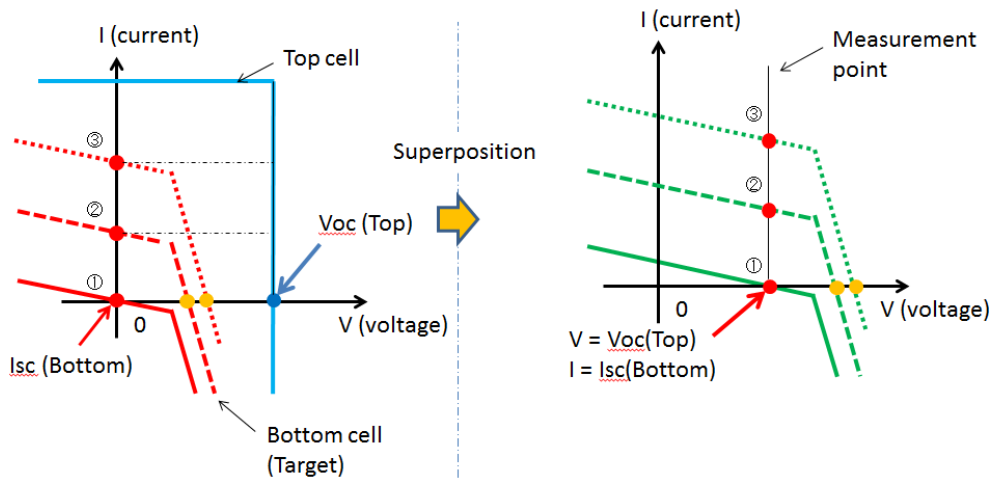


図 3-3 トップセルの FF が 100% という理想的な状態

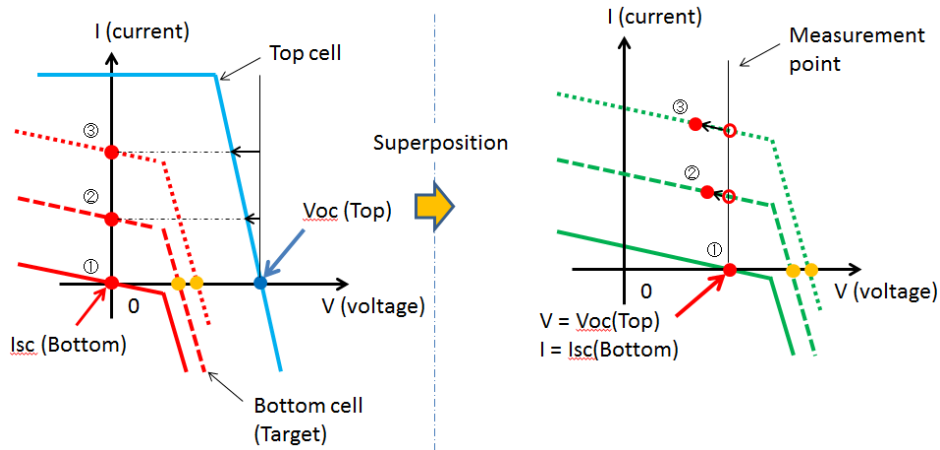


図 3-4 トップセルの FF が 100% ではない通常の状態

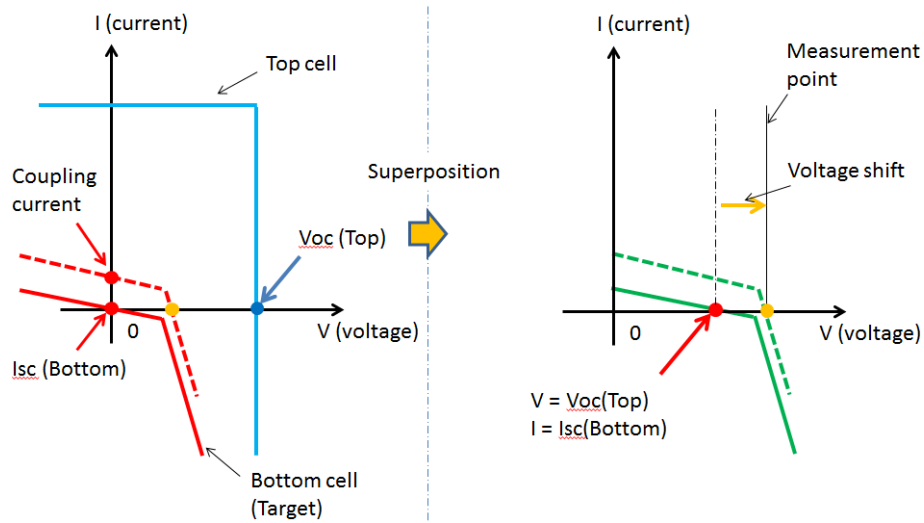


図 3-5 高バイアス強度によりルミネッセンスカップリングが起こっている状況

3-2-3 エレクトロルミネッセンス法 (Electro Luminescence : EL)

ここで使用される EL 法とは、太陽電池に外部から電界を印加してキャリアを注入し、再結合過程の 1 つである発光再結合によって放射される光の強度を検出器によって測定する方法のことである。言い換えれば、ダイオードの暗電流特性をダイオードから放射される光強度の大きさも合わせて測定する方法である。外部バイアスの大きさを変化させることで注入するキャリアの量が変わるので、それに伴って検出される光強度も変化する。放射される光は、ダイオードのバンドギャップに応じたエネルギーを持つ波長が検出される。例えば GaAs (約 1.4eV) であれば、886nm 前後の光が検出されることになる。多接合タンデム太陽電池であれば、接合数に応じた光の波長のピークを検出することになる。3 接合の場合での測定概念図を図 3-6 に示す。

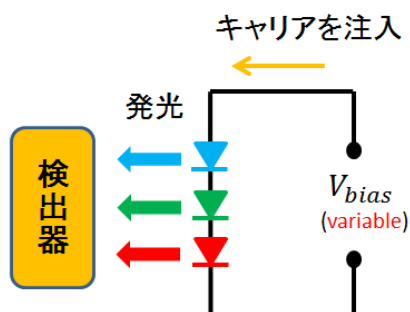


図 3-6 EL 法による測定概念図

外部バイアスをおある値に設定し、注入するキャリア（電流）を固定したときに検出される光強度をプロットすると図 3-7(a)のようになる。図 3-7(b)には各サブセルの外部量子効率が示されているが、検出される光強度のピークがほぼ立ち上がりの部分と一致することから、最も検出されるのは各サブセルのバンドギャップに応じた波長の光であることが分かる。これらピーク波長の強度を、注入電流量を変化させて測定すると図 3-8 のようになる。注入する電流量を大きくしていく、つまり外部バイアス電圧を大きくしていくことで、発光強度も増加しているのが分かる。

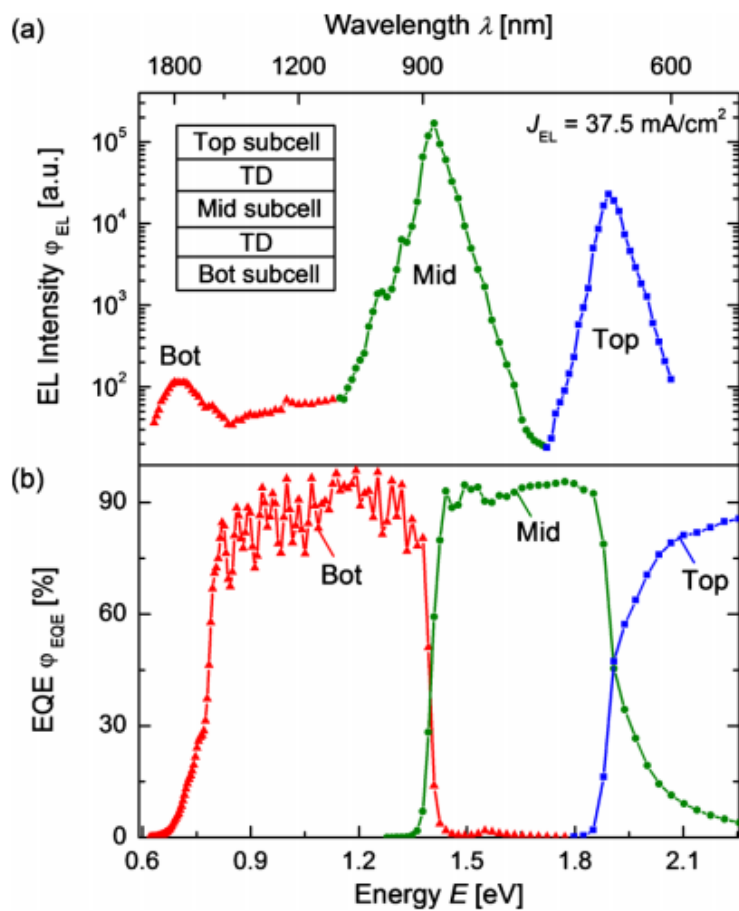


図 3-7 (a)注入電流 : 37.5 mA/cm^2 時の各サブセルからの発光強度、(b)各サブセルの EQE^[2]

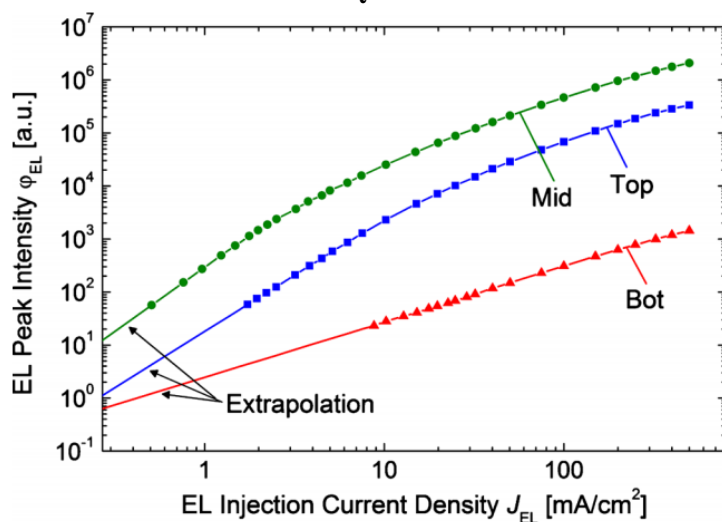


図 3-8 ピーク波長における発光強度の注入電流に対する依存性^[2]

単接合太陽電池であれば、光強度を測定しなくても印加した外部バイアス電圧がそのまま太陽電池にかかるはずなので、電流さえ測定すれば電流—電圧特性を知ることができる。しかし多接合タンデム太陽電池の場合、外部バイアス電圧の値がそのまま各サブセルにかかる訳ではなく、あくまで各サブセルにかかっているバイアス電圧の合計が外部バイアス電圧に等しいということになる。電流に関しては、各サブセルが直列に接続されているので全て等しい電流が流れる。つまり多接合の場合は、各サブセルにかかっているバイアス電圧を知ることができれば、各サブセルの電流—電圧特性を得ることができる。その各サブセルにかかっている電圧を、各サブセルから放射される光の強度より計算で求める。その計算式が、以下のように与えられている。

$$\varphi_{EL,i}(J_{EL}) = \varphi_{EQE,i}(\lambda_{peak}) \cdot \varphi_{BB}(\lambda_{peak}) \left[\exp\left(\frac{qV_i(J_{EL})}{kT}\right) - 1 \right]$$

これは **Reciprocity theory** から導かれるものである^[3]。それぞれの変数については、 $\varphi_{EL,i}(J_{EL})$: 注入電流が J_{EL} 時のあるサブセルから発光する光強度、 $\varphi_{EQE,i}(\lambda_{peak})$: 各サブセルのピーク波長における外部量子効率、 $\varphi_{BB}(\lambda_{peak})$: 各サブセルのピーク波長における黒体輻射、を表している。各サブセルの電圧を知りたいので、上式の黒体輻射における式をボルツマン近似し、更に係数部分を定数 C で置き換えて $V_i(J_{EL})$ について上式を解くと、

$$V_i(J_{EL}) = \frac{kT}{q} \ln[\varphi_{EL,i}(J_{EL})] + \frac{E}{q} - 2 \frac{kT}{q} \ln(E) - \frac{kT}{q} \ln[\varphi_{EQE,i}(\lambda_{peak})] - \frac{kT}{q} \ln(C)$$

と表すことができる。この式を用いることで各サブセルの電圧を計算することができるので、各サブセルの電流—電圧特性を求めることができ、その特性から電気特性を抽出することができる。しかしここで注意すべき点は、上式を使うことで各サブセルの電圧を求めるとはできるが、電流は実際には発光再結合で失われるものもあれば、非発光再結合の過程で失われるものもある。この式では発光再結合によって全て失われていることになるため、このままでは電流—電圧特性の電流部分に誤差が生じてしまう。また、漏れ電流のような小さな領域において発光再結合過程はほぼ生じないため、**EL**法での抽出は難しい。

3-3 新規評価法：スペクトル感度-電圧測定法（SR-V法）

3-3-1 測定概要

スペクトル感度-電圧測定法（SR-V法）は、分光感度測定とよく似ている手法になる。分光感度測定では、測定対象であるサブセルに電流律速をかけながら、そのサブセルの吸収波長領域の単色光を照射して出力される電流を計測していく。その際、外部バイアスは一定になっている。つまり外部バイアスは変化させず、単色光の波長を変化させる測定となる。それに対してSR-V法は、吸収波長の単色光は変化させず、外部バイアスを変化させる測定となる。この測定によって、各サブセルの電流-電圧特性を得ることができる。まずはSR-V法を行う測定系を示し、後にどのようなデータが得られるかを示す。

3-3-2 測定系

SR-V法はタカノ株式会社と共同で開発をしたALIS-A500を使用して行う。外観図を図3-9に示す。



図 3-9 ALIS-A500 外観図

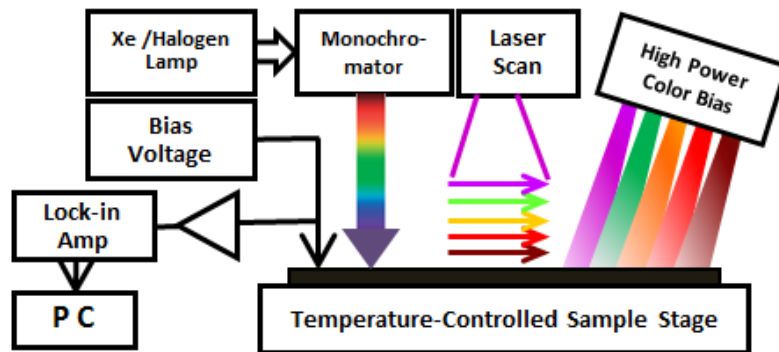


図 3-10 ALIS-A500 各種機器の役割

次に、本装置の概要を以下に示す。

■ 概要^[4]

試料サイズ：最大 20×20mm

測定波長範囲：300～2000nm

波長ステップ：1nm 単位で任意

分光計測項目：分光感度、量子効率、短絡電流

電流電圧特性：サブセル毎の IV カーブ計測可能

カラーバイアス：5 波長高出力 LED 光源

バイアス印可電圧：-5 ～ +5V

LBIC 発電分布画像：5 波長レーザー光源、ガルバノメータミラー走査

温度可変サンプルステージ：-10 ～ +100℃

本装置の特徴はカラーバイアス光が 5 波長あり、それぞれ 430nm、660nm、780nm、970nm、1550nm が用意されている。また照射強度も大きく、それぞれ最大で 47.5mW/cm²、293.46mW/cm²、131.24mW/cm²、30.84mW/cm²、3.5mW/cm² となっている。この 5 波長により、最大 5 接合まで評価することが可能となる。またレーザースキャンによる各サブセルの発電マップ評価を行うことができるため、欠陥評価などにも応用することができる。分光感度測定用の光源は、Xe ランプを使用している。また本装置は 1800～2500nm までの分光測定をするための IR 分光光源用として赤外高強度も強い 150W ハロゲンランプも搭載している。

更に本装置の大きな特徴として、分光感度測定のように単色光を照射しつつ外部バイアスを可変しながら信号を取得できる（単色光の波長は固定されている）。つまり、各サブセルの電流—電圧特性を測定することができる。この測定法のことを SR-V 法と呼ぶが、この測定法について以下で詳しく述べる。

3-3-3 SR-V 法 I : バイアス光あり

多接合タンデム太陽電池の各サブセルの特性を評価するためには、単接合の場合とは異なる注意が必要であることを 3-2 節で詳しく述べた。SR-V 法 I では、「測定対象となっているサブセル以外には DC バイアス光を照射し、測定対象となっているサブセルには AC バイアス光（本装置ではモノクロ光）を照射する」測定法について説明する。

先ず測定に使用するサンプルだが、3 接合と 2 接合の 2 種類を考える。どちらも我々が MOCVD(Metal Organic Chemical Vapor Deposition)により作製したものである。3 接合タンデム太陽電池は、格子整合系である $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ 、2 接合タンデム太陽電池は、格子整合系の $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ である。それぞれの 1sun, 93sun での電流—電圧特性と、分光感度・量子効率特性を以下に示す。

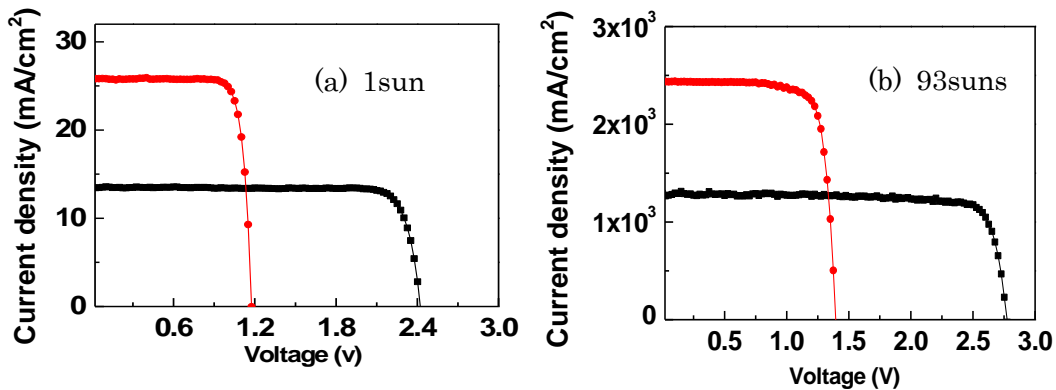


図 3-11 (a) 1sun、(b)93suns 時の電流—電圧特性^[5]

赤 : $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ 2 接合セル、黒 : $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ 3 接合セル

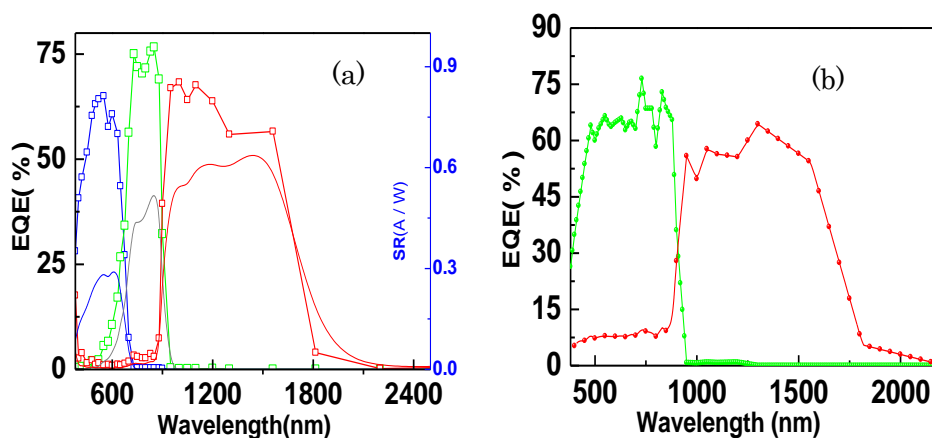


図 3-12 分光感度・量子効率特性^[5]

(a) 3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ セル、(b) 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ セル

本項では 3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ セルの場合について考える。
各サブセルを通電状態にするために使用する DC バイアス光は以下のとおりである。

■ LED カラーバイアス光

トップセル：430nm

ミドルセル：780nm

ボトムセル：1550nm

また取得する電流信号のために用いる AC バイアス光（モノクロ光）は以下のとおりである。

■ Xe ランプによるモノクロ光

トップセル：470nm

ミドルセル：780nm

ボトムセル：1200nm

SR-V 法は基本的には EQE の応用であることから、Xe ランプによるモノクロ光の照射強度は LED カラーバイアス光の強度よりも十分小さく設定されている。本実験においてモノクロ光の照射強度は $150\mu\text{W}/\text{cm}^2$ に設定されている。

これで各サブセルに照射する波長を決定したので、これら波長を固定したまま外部バイアス電圧を変化させれば各サブセルの SR-V データを取得することができる。各サブセルの SR-V データを取得するためには、図 3-13 のように光を照射すればよい。

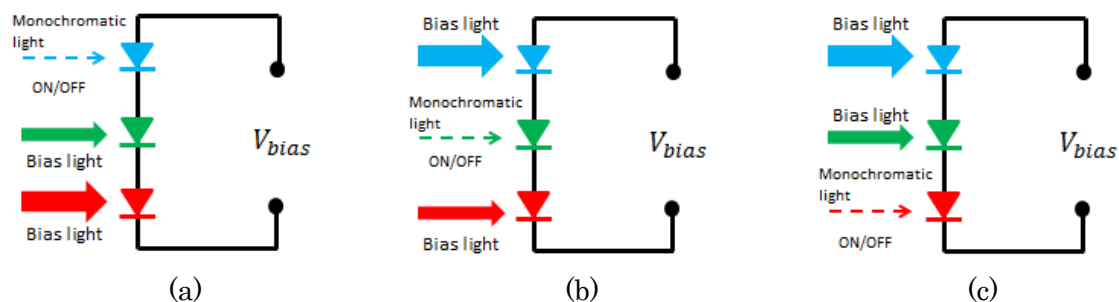


図 3-13 SR-V 法による各サブセルの評価法
(左からトップセル、ミドルセル、ボトムセルの測定状態図)

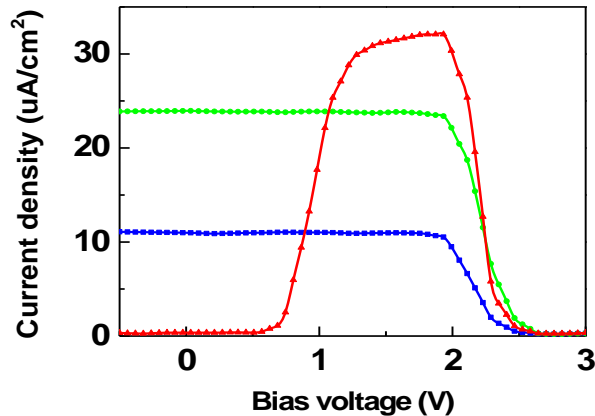


図 3-14 各サブセルの SR-V データ 青：トップセル、緑：ミドルセル、赤：ボトムセル

次に、図 3-14 のようなグラフがどうして得られるのかをシミュレータソフト LTspice[®]を用いて説明する。LTspice[®]とはリニアテクノロジー社が無償で提供している回路シミュレータソフトであり、SPICE(Simulation Program with Integrated Circuit Emphasis)の派生したものである。SPICE は電子回路のアナログ動作をシミュレーションするソフトウェアであり、シミュレーション対象となる回路は一般的な受動素子(抵抗、コンデンサーなど)と能動素子(ダイオード、トランジスタなど)と伝送線路、各種電源を組み合わせたものである。第 2 章で太陽電池を等価回路モデルで表すとダイオードと抵抗で表すことが可能ということを示した。それ故、LTspice により太陽電池の理想的な動作特性を考えることができる。3 接合の場合、以下のような回路図となる。

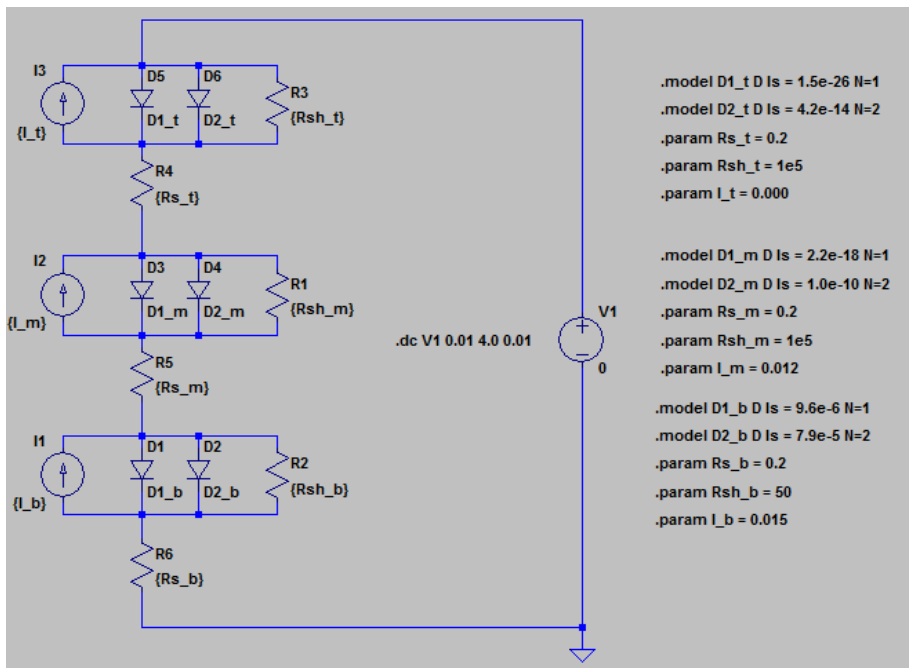


図 3-15 LTspice 上の回路図

各サブセルのダイオードは、理想係数 $n = 1$ ：拡散電流成分、理想係数 $n = 2$ ：非発光再結合電流成分の2つを表している。電流源は、DC バイアス光によって生成される値、もしくは AC バイアス光によって生成される値のどちらかが代入される。ダイオード係数と直列抵抗、並列抵抗は[7]を参照している。この回路図を使って、各サブセルの SR-V データを再現する。

I. トップセル・ミドルセル

この2つは同様の形状になっているので、トップセルの測定状況を例にして説明する。トップセルを測定する時は図 3-13(a)の状況であるため、ミドルセル・ボトムセルは通電状態になり、トップセルは暗状態かモノクロ光照射により僅かに電流を生じた状態になる。ここで、仮に各サブセルの電流—電圧特性が分かっているとすれば、以下のような電流電圧特性が得られる。

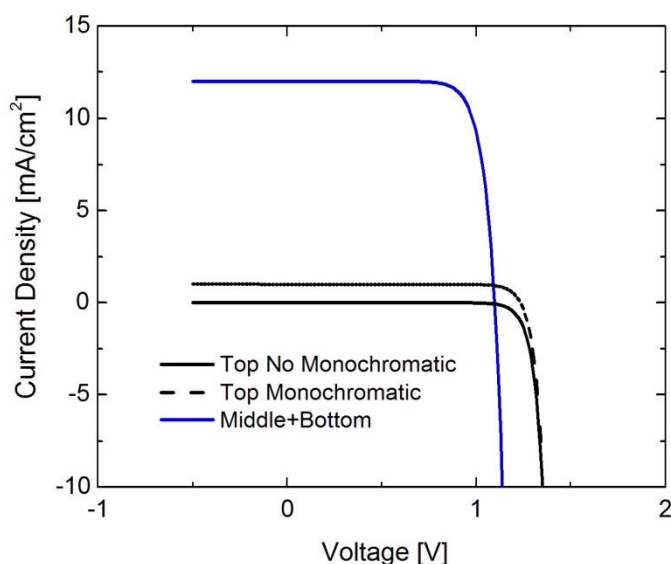


図 3-16 各サブセルの電流—電圧特性

図 3-16 はあくまで仮想的な電流—電圧特性であり、LTspice 上でシミュレーションした結果になる。ミドルセル・ボトムセルは既に合成した電流—電圧特性となっており、LED バイアス光を常時照射しているため、変化しない。それに対してトップセルは、モノクロ光を照射している時と、照射していない時とで2通りあるため、曲線が2つある。ただし、多接合化した時点でこのように電流—電圧特性はサブセルごとに計測できず、これら2つの曲線を重ね合わせたものになる。その重ね合わさった曲線は以下のようになる。

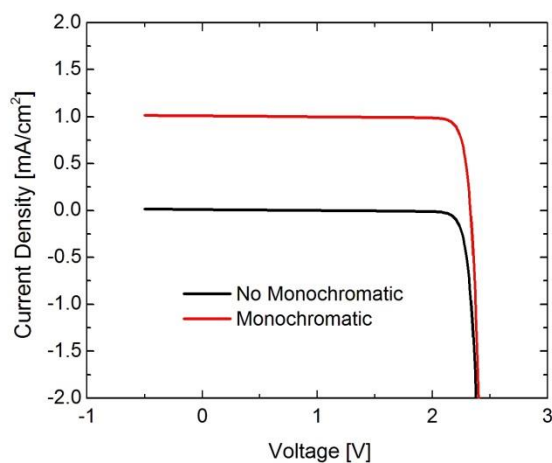


図 3-17 実際に測定される 2 つの電流—電圧特性

実際の測定ではこの 2 種類が測定されることになる。このグラフは 2 つとも 2.0V 辺りまではほぼ水平である。2.0V を超えたあたりで暗電流成分が大きくなり急激に電流が減少する。このグラフは、ミドルセルとボトムセルの開放電圧分だけトップセルの電流—電圧特性をシフトさせた、ほぼトップセルの形状と言ってよい。これはトップセルのシャント抵抗が非常に大きいため、電流律速がモノクロ光を照射した時としていない時で変化しないことによる（この現象と違った振る舞いを見せるのが次に示すボトムセルである）。

SR-V 法では EQE と同様、モノクロ光照射時と照射していない時の電流差分を計測することになる。式で表せば、

$$J_{\text{measured}}(V) = J_{\text{Monochro}}(V) - J_{\text{No Monochro}}(V)$$

となる（ロックインアンプによって計測する際は、モノクロ光照射 On/Off のデューティ比も考慮する必要がある）。つまり、2 つの差分を取ったものが SR-V データとして取得される。測定対象サブセルがトップセルの場合、上式の右辺 2 式は次のように表されるとする。

$$J_{\text{Monochro}}(V^{top}) = J_{\text{monochro}} - J_{\text{diff},0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{\text{rad},0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-1)$$

$$J_{\text{No Monochro}}(V^{top}) = -J_{\text{diff},0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{\text{rad},0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-2)$$

$$V = V^{top} + V_{oc}^{middle} + V_{oc}^{bottom}$$

(3-1)、(3-2)両式は単接合セルの場合の電流－電圧特性の式となっている。これは測定対象となっているサブセルに特性が律速されることからこのような式に近似されている。ゆえに、 $J_{diff,0}$ 、 $J_{nrad,0}$ 、 R_{sh} はトップセルのパラメータが使用されている。ただし測定される外部電圧は、各サブセルで生じている和となっている。

ここで、実験により取得された SR-V データと、図 3-17 の電流－電圧特性とを対応させてみる。

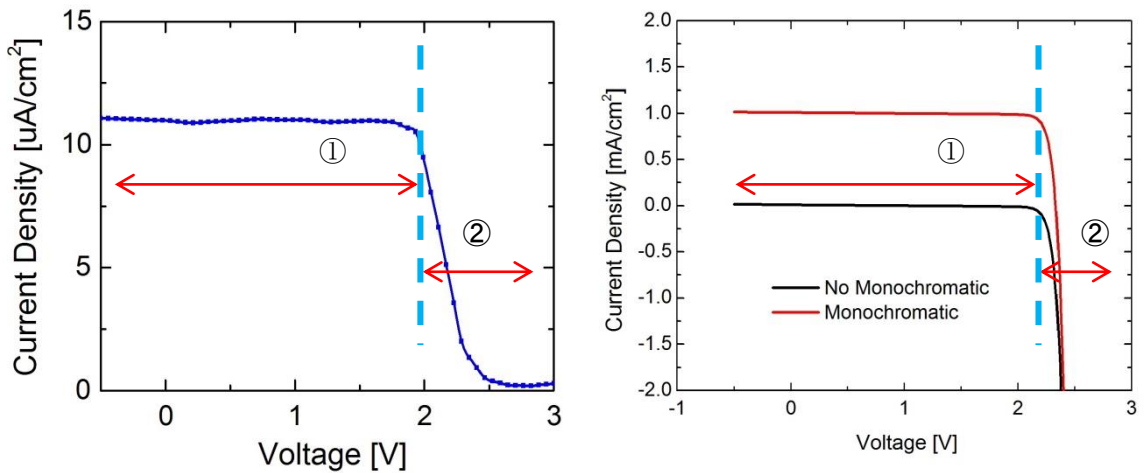


図 3-18 実験データと 2 つの電流－電圧特性との対応

電流と電圧の大きさは一致していないが、曲線の傾向性は一致している。

①の領域では、ちょうどモノクロ光によって生成した電流分だけ増加しているため、その電流分が見えている。トップセルに律速がかかっているため、電流の変化が見られない。この領域は(3-1)、(3-2)式で考えれば、トップセルの両端にかけられている電圧が小さいため、 exp で効いてくる暗電流は非常に小さく、ほぼ並列抵抗に流れる電流のみで近似することができる。またトップセルの並列抵抗は非常に大きいため、この電流もほぼ 0 に近似することができるため、結局、(3-1)式 = $J_{monochro}$ 、(3-2)式 = 0、と近似することができる。SR-V 特性はこれらの差分で表されるため、 $J_{monochro}$ の電流が検出されることになる。

②の領域では、暗電流成分が大きくなることから電流が急激に減少する。そのため、2 つの電流差分が殆ど見られなくなることから SR-V データも 0 に近づいていく。ここで注意することは、SR-V データはあくまで電流差分を検出しているため、電流値は必ず 0 以上となり、負になることはない。ここでも(3-1)、(3-2)式で考えると、この領域になるとトップセルにかけられる電圧が大きくなっていくため、 exp で増加する暗電流が急激に増加するため、(3-1)式の $J_{monochro}$ を無視することができる。すると(3-1)、(3-2)の

両式は全く同様なトップセルの暗電流特性となる。SR-V 測定はこれらの差分であるため、ほぼ同じ暗電流特性であれば 0 となる。ゆえに、検出される電流が急激に小さくなり、最終的には 0 へ漸近していくグラフが得られる。

II. ボトムセル

この測定は図 3-13(c)の状況であるためトップセル・ミドルセルは通電状態になり、ボトムセルは暗状態かモノクロ光照射により僅かに電流を生じた状態になる。ここで、仮に各サブセルの電流－電圧特性が分かっているとすれば、以下のような電流－電圧特性が得られる。

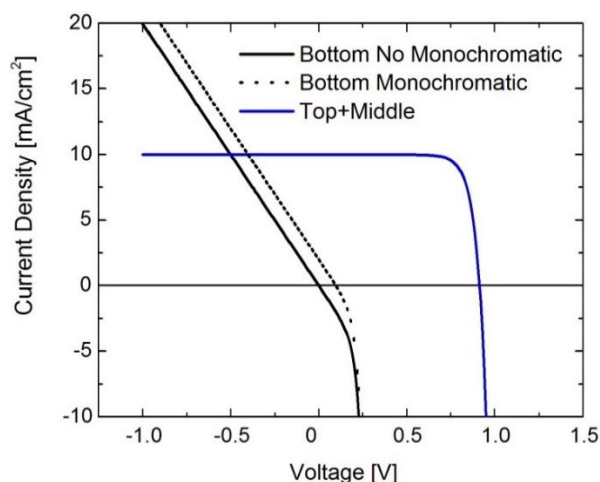


図 3-19 各サブセルの電流－電圧特性

トップセル・ミドルセルは既に合成した電流－電圧特性となっており、LED バイアス光を常時照射しているため、変化しない。それに対してボトムセルは、モノクロ光を照射している時と、照射していない時とで 2 通りあるため、曲線が 2 つある。ただし、多接合化した時点でこのように電流－電圧特性はサブセルごとに計測できず、これら 2 つの曲線を重ね合わせたものになる。その重ね合わさった曲線は図 3-20 のようになる。

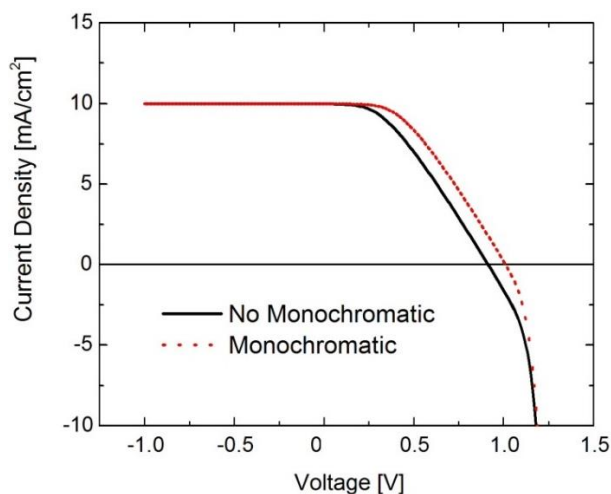


図 3-20 実際に測定される 2 つの電流－電圧特性

実際の測定ではこの 2 種類が測定されることになる。ここで注意することは、0V 以下では曲線がほぼ水平になっていることである。これは電流律速条件に従い、電流生成の小さいトップセル・ミドルセルのどちらかに律速されている。トップセル・ミドルセルは並列抵抗が大きいいため、ほぼ水平となる。このような状況になったのは、ボトムセルの並列抵抗が小さいためである。ボトムセルの並列抵抗が大きければ、このようなことは起こりえない（トップセル・ミドルセルの場合に起こらなかったことから推測できる）。ただし、このような現象は並列抵抗だけで起こるものではなく、逆バイアスによるブレイクダウンによっても起こり得る。シャント抵抗が良くても、ブレイクダウン電圧が小さければ上図のように律速状況の変化が起こり、別のセルの特性が見られるようになる。水平部分の曲線はトップセル・ミドルセルの特性を表しているので、バイアス光変化が起きていないことにより、水平部分の曲線も殆ど変化は起こらない。

SR-V 法では EQE と同様、モノクロ光照射時と照射していない時の電流差分を計測することになる。前述 I. のトップセル・ミドルセルの時と同様にして、実験により取得された SR-V データと、上の電流－電圧特性とを対応させてみる。その前に I. で使用した(3-1)、(3-2)式のボトムセルに対応する式を以下に示す。

$$J_{Monochro}(V^{bottom}) = J_{monochro} - J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-3)$$

$$J_{No Monochro}(V^{bottom}) = -J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-4)$$

$$V = V_{oc}^{top} + V_{oc}^{middle} + V^{bottom}$$

違いとしては、電圧部分がボトムセルに変化したことと、 $J_{diff,0}$, $J_{rad,0}$, R_{sh} がボトムセルのパラメータに変わったことである。

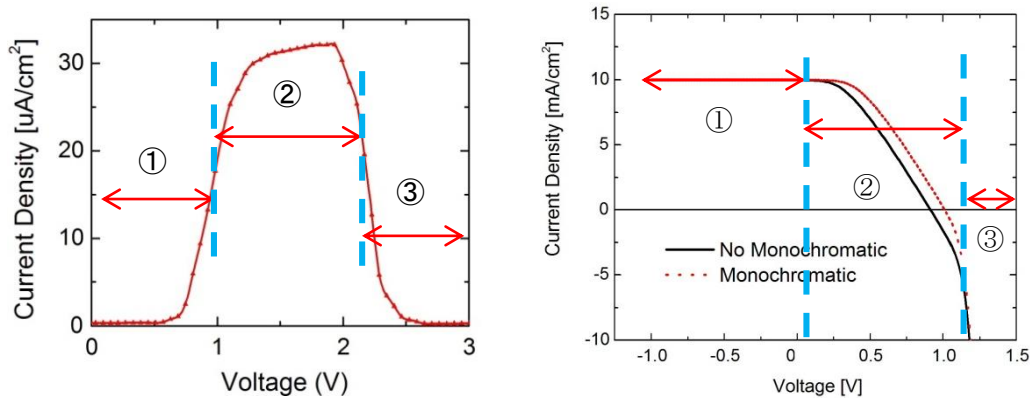


図 3-21 実験データと 2 つの電流－電圧特性との対応

ここでも電圧が一致をしていないが、曲線の傾向性は一致している。

①の領域では、トップ・ミドルセルに律速されているため、ほぼ電流が検出されない。僅かに見える信号は、トップセルもしくはミドルセルのシャント抵抗成分による信号である。仮にシャント抵抗を無限大にすれば、この領域の信号は限りなく 0 に近づく（ダイオードの逆飽和電流を無視すれば）。この領域は電流律速がボトムセルでなくトップセルにかけられているため、I.で示した(3-1)、(3-2)式で表される。トップセルへはモノクロ光を照射していないため、(3-1)、(3-2)式はほぼ同じ式となるため、差分がほぼ 0 となる。よって検出電流がほぼ 0 となる。

②の領域からはボトムセルの領域となる。ほぼ信号が検出されていなかった 1 の領域から信号が検出されるようになるため、急峻に立ち上がる。これは(3-1)、(3-2)式で表されていた領域から(3-3)、(3-4)式で表されるようになり、ボトムセルに照射しているモノクロ光の影響が開始するためである。しかし、ボトムセルにかけられる電圧が大きくなると(3-3)、(3-4)式の exp で効いてくる暗電流が増加していくため電流が急激に変化する。すると I.でも述べたように両式がほぼ同じ式で近似されることになってしまうため、2 つの電流差分が小さくなる。よって SR-V データも急激に減少する。

③の領域では 2 つの電流差分はほぼなくなるため、0 に収束していく。これは、(3-3)、(3-4)式の exp で効く項が非常に大きくなるため、(3-3)式の $J_{monochro}$ が無視できる。そのため両式はほぼ同じ式となり、差分をとるとほぼ 0 となる。ここで注意することは、SR-V データはあくまで電流差分を検出しているの、電流値は必ず 0 以上となり、負になることはない。

次に SR-V 測定をする際、Xe ランプによるモノクロ光の波長を任意に選択できることを示す。SR-V データは原理的に、外部バイアスを可変して測定した分光感度(SR)特性と一致しなければならない。この一致が満たされれば、代表的な波長を選んで測定した SR-V データで各サブセルの評価・解析を行ってよいことを示せる。そこで、各サブセルに照射するモノクロ光波長を変化させて測定した SR-V データを図 3-22 に示す。

図からも分かるように、各サブセルの SR-V データは縦軸の電流値以外は殆ど変化が見られない。更に各曲線を微分したグラフを各図の中に示してあるが、微分係数が大きく立ち下がる電圧も殆どシフトしていないことが分かる。つまりモノクロ光の波長を変化させても、SR-V データ縦軸の電流値以外は変化を受けないと言える。この実験結果より今後各サブセルの評価・解析する際に選択するモノクロ光の波長によって各サブセルの電気特性が変化することはないということを保証できる。

(※付け加えておくと、ボトムセルの微分係数の立ち上がり電圧が変化しないということは、トップセル・ミドルセルは十分なバイアス光強度で通電状態にされていることを示している。)

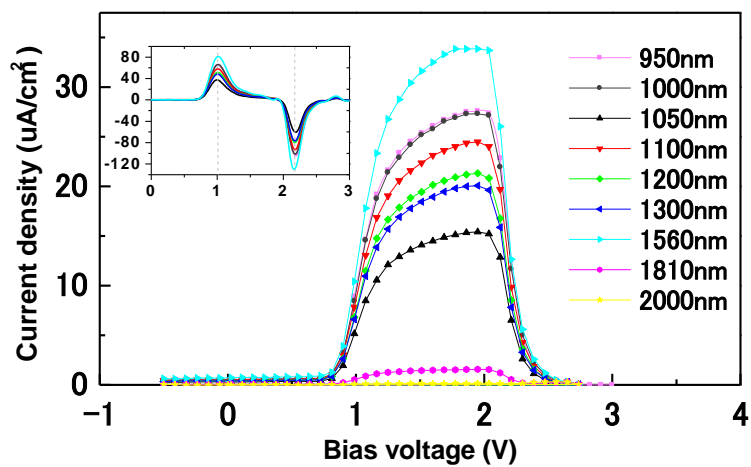
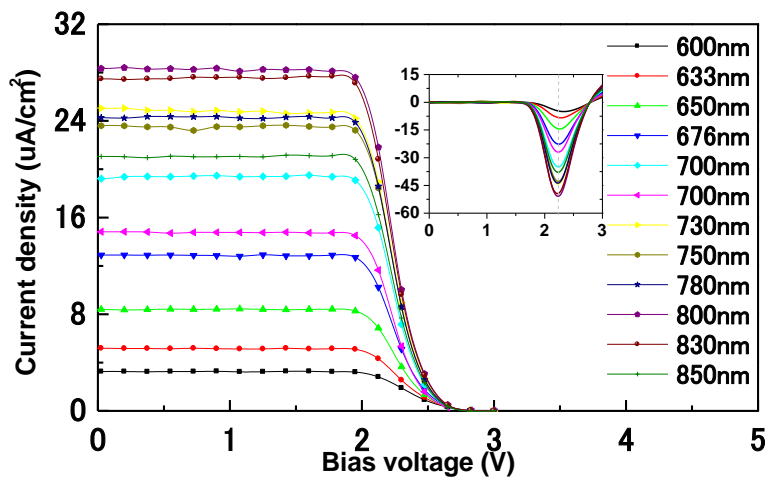
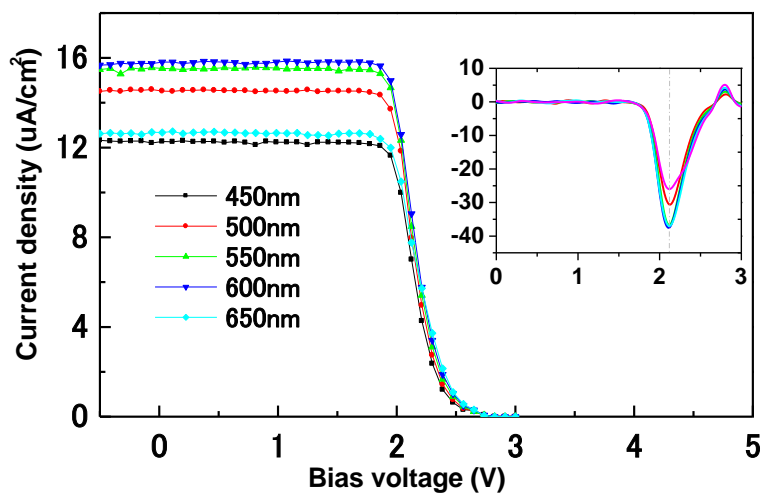


図 3-22 各サブセルの SR-V データのモノクロ光波長依存性^[5]

3-3-4 SR-V 法 II : バイアス光なし

前項では、「測定対象となっているサブセル以外には DC バイアス光を照射し、測定対象となっているサブセルには AC バイアス光（本装置ではモノクロ光）を照射する」測定法について説明したが、本項では、「測定対象となっているサブセル以外に対して AC バイアス光を照射し、測定対象となっているサブセルには何も照射しない」測定法について説明する。この測定法を、測定対象にバイアス光を照射しないことから、「バイアス光なしの SR-V 法」と呼ぶことにする。ここでは前項で取り上げた格子整合系の 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデムセルを用いて説明をする。

測定対象にバイアス光を照射しないため Xe ランプによるモノクロ光は使用せず、カラーバイアス光のみを使用する。使用するバイアス光を以下に示す。

■ LED カラーバイアス光

トップセル : 430nm

ボトムセル : 970nm

照射するバイアス光は、本装置に取りつけられているカラーバイアス光の波長で各サブセルが吸収するものに設定した。また、トップセルに照射するバイアス光は全てトップセルで吸収できるようなるべく短波長を選択した。バイアス光波長を決定したので、各サブセルの SR-V データを取得することができる。前項の実験ではロックインアンプを使用して計測を行っていたが、本実験ではロックインアンプを使用せず、LED バイアス光が照射されている時・照射されていない時の両方の直流電流—電圧特性を計測し、その差分を SR-V データとして考える。通常はロックインアンプを用いて計測するのだが、LED による SR-V 測定ではチョッパーにより LED 光を擬似的に ON/OFF するのではなく、LED そのものの電源を ON/OFF するような装置の仕組みになっており、設定した LED 光源の電力でセルを照射することができず不安定になってしまう。こうした理由で、ロックインアンプを用いずに直流電流—電圧特性の差分により SR-V データとする。各サブセルの SR-V データを取得するためには以下の図のようにして計測を行う。

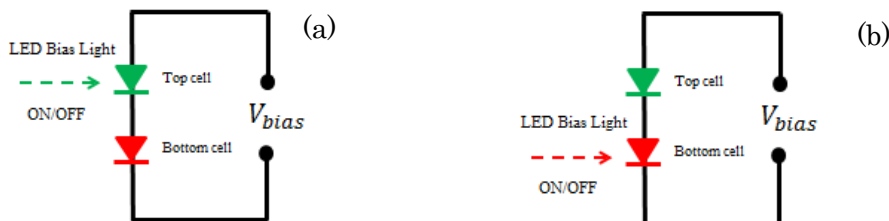


図 3-23 各サブセルの SR-V データ取得図 (a)ボトムセル、(b)トップセル

従来、EQE 測定にしても、前項で説明をした「バイアス光あり」での SR-V 法にしても、測定対象となっているサブセルに対して AC バイアス光を照射してその特性を取得してきた。しかし図 3-23 にも示してあるように、本項での測定法は測定対象となっているサブセルにはバイアス光を照射しない、ということが重要な点となる。これまでの方法では、モノクロ光を照射している時・照射していない時、両方の状態で測定対象となっているサブセルに電流律速がかかっていた。それに対し、図 3-23 ではバイアス光を照射していない時は全てのサブセルが暗状態になっているため、どのサブセルに電流律速がかかっているかは各サブセルの電気特性によるため分からないが（電圧が小さい領域では、シャント抵抗が大きくトップセルに律速がかかっており、電圧が大きい領域ではダイオード係数が大きいボトムセルに律速がかかっていると考えてよい）、バイアス光を照射した時に測定対象となっているサブセルに電流律速がかかるようになっていく。つまり、バイアス光が照射されている時とされていない時の両方で電流律速がかかっているわけではないが、必ず電流律速がかかる状況が作り出されるため、測定対象となっているサブセルの特性を取得することができる。図 3-23 のような方法で得られた各サブセルの SR-V データを図 3-24 に示す。

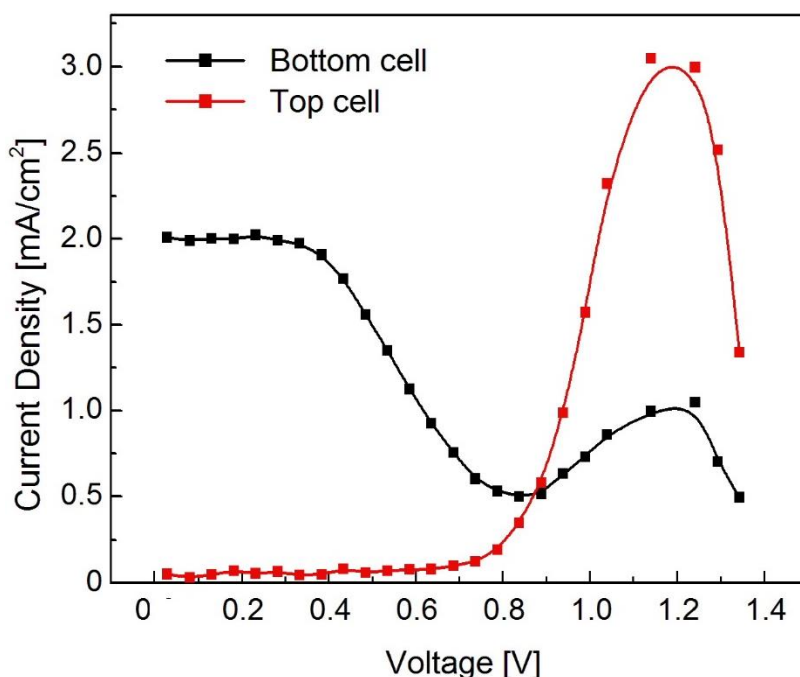


図 3-24 バイアス光なしの SR-V 法により得られた各サブセルのデータ^[8]

それでは次に前項同様、図 3-24 の SR-V データが何故このような形状になるのかをトップセル・ボトムセルに分けて説明をする。ここでも回路シミュレータ LTspice を用いて説明をする。使用した回路図、各種パラメータは図 3-25 に示す。今回は 2 接合のため、図 3-25 も 2 接合用の回路図に変更した。

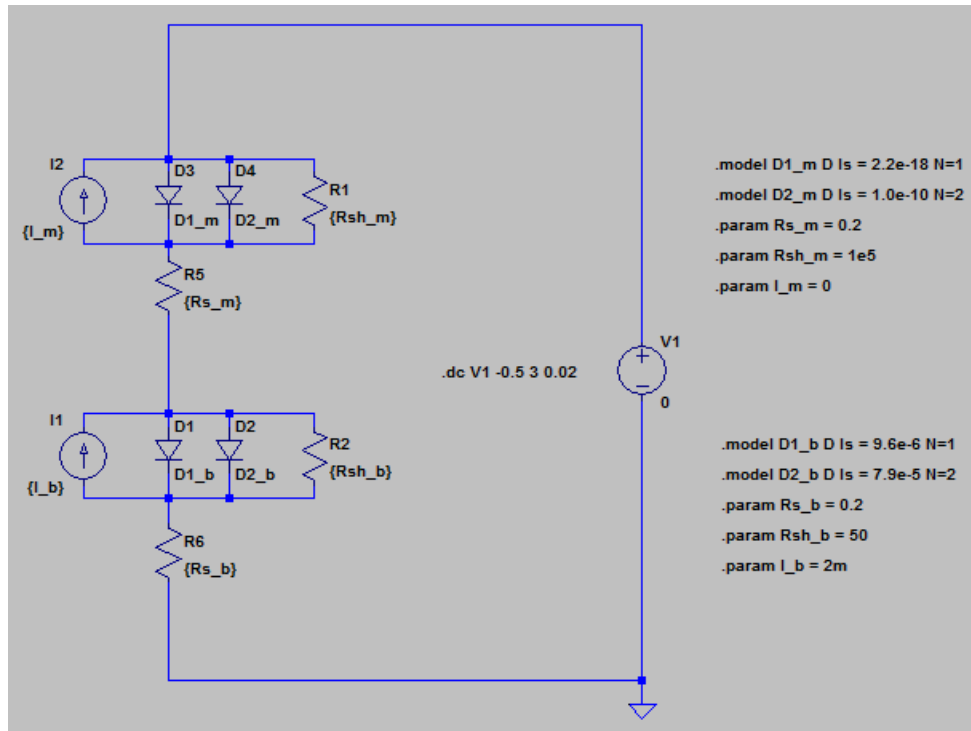


図 3-25 LTspice 上の回路図

I. トップセル

この場合、測定状況は図 3-23(b)のようになっている。ここではバイアス光をボトムセルに照射している時・していない時、両方で測定される電流－電圧特性を同じグラフに書くと以下のようなになる。

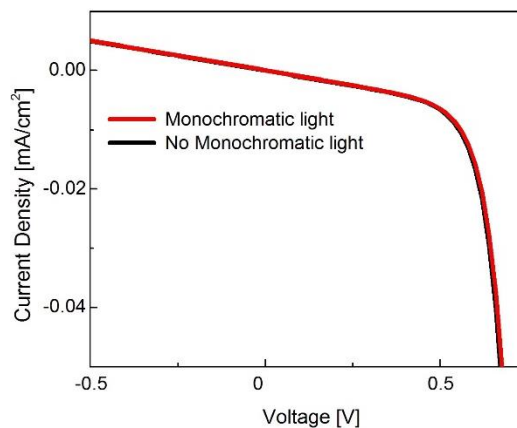


図 3-26 実際に測定される 2 つの電流－電圧特性

バイアス光の ON/OFF でそれ程変化がないように見える。これは、バイアス光を照射していない全てのサブセルが暗状態の時もトップセルに電流律速がかかっていることによる。このグラフを拡大したものが図 3-27 である。

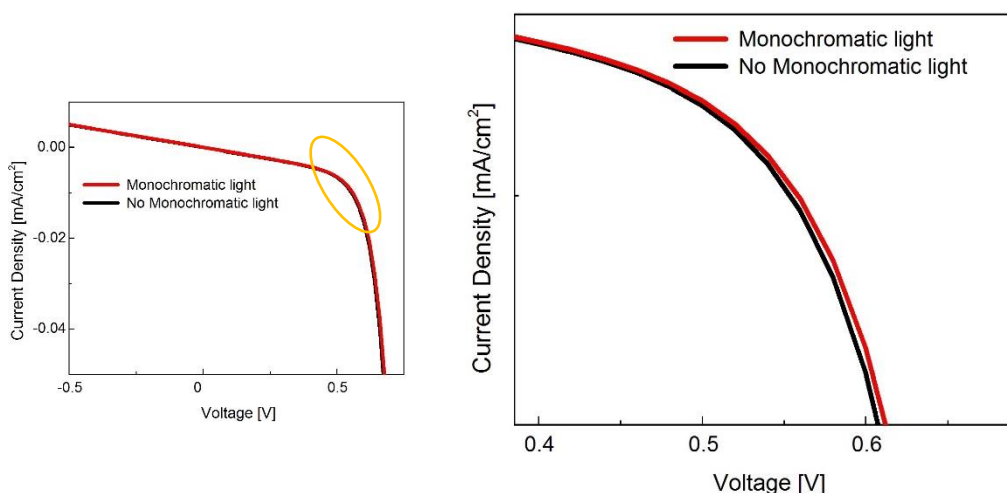


図 3-27 電流－電圧特性の拡大図

バイアス光を照射することにより、僅かに電圧シフトが起こっている。これはボトムセルに対してバイアス光を照射したことによって光起電力が生成されたことによる。SR-V データは、この両者の差分を取ることによって得られるので差分を取ると以下のようにになる。

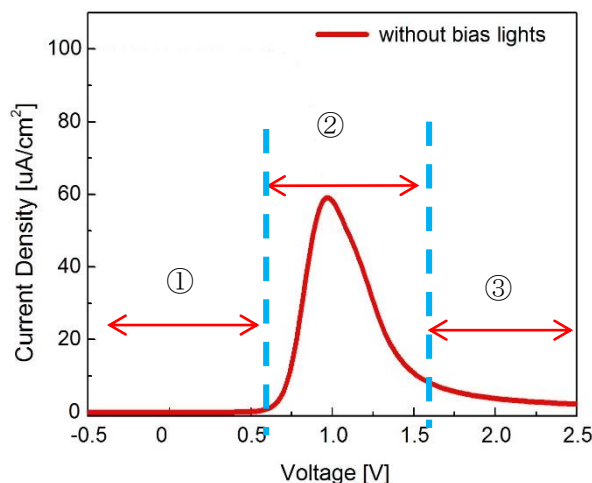


図 3-28 トップセルの SR-V データ

上図は電圧と電流の違いは無視したとすれば、図 3-24 のトップセルと同じ形状となっている。トップセルの SR-V データはこのようにして得られている。ここでも図 3-28 の各領域について説明をする。その際、前項でも示した電流式を用いるので、その電流式を以下に示す。

$$J_{bias}(V^{top} + \Delta V) = -J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + \Delta V + J(V^{top} + \Delta V) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + \Delta V + J(V^{top} + \Delta V) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{top} + \Delta V + J(V^{top} + \Delta V) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-5)$$

$$J_{no\ bias}(V^{top}) = -J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{top} + J(V^{top}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-6)$$

$$V = V_{oc}^{bottom} + V^{top} \\ \Delta V \cong \frac{nkT}{q} \ln \left(\frac{J_0^{bottom}}{J_{sc}^{bottom}} + 1 \right) \quad (3-7)$$

J_{sc}^{bottom} : ボトムセルへ照射するバイアス光強度に依存

①の領域では、電流－電圧特性のトップセルのシャント抵抗部分による差分となる。何故なら、トップセルの両端にかけられている電圧は小さいため、(3-5), (3-6)式の exp で効いてくる項は無視することができ、第3項のシャント抵抗部分だけが効いてくるためである。電流－電圧特性を見て分かるように、トップセルのシャント抵抗は非常に大きいため殆ど差分が発生しない。そのため、ほぼ信号が得られない。

②の領域は、ボトムセルの電圧シフトの影響がようやく見えてくる部分となり、ちょうど拡大して表示した電流－電圧特性の箇所となる。この電圧シフト量は(3-5)式で現れる ΔV である。この ΔV はボトムセルに照射した AC バイアス光によって発生する起電圧となるので、(3-7)式のように近似的に表すことができる。この僅かではあるが必ず生じる ΔV の影響を受けて電流－電圧特性が変化するため、(3-5), (3-6)式の差分をとると出力信号を得ることができる。しかしトップセルにかけられる電圧が大きくなると、暗電流成分は exp で効いてくるため、この電圧シフト ΔV の影響がほとんど見えなくなる。すると(3-5)式は、 ΔV を無視できるので(3-6)式と同じ形に近似できる。SR-V 測定は両式の差分であるため、ほぼ同じ式で近似できることから出力信号が急激に減少する。

③の領域は、暗電流成分が大きくなり電圧シフトの影響がなくなるため 0 に収束していく。前項でも注意したが、SR-V 法はあくまで電流差分を信号として取得するため、電流値は必ず 0 以上であり、負にはならない。

II. ボトムセル

この場合、測定状況は図 3-23(a)のようになっている。ここではバイアス光をミドルセルに照射している時・していない時、両者で測定される電流－電圧特性を同じグラフに書くと図 3-29 のようになる。

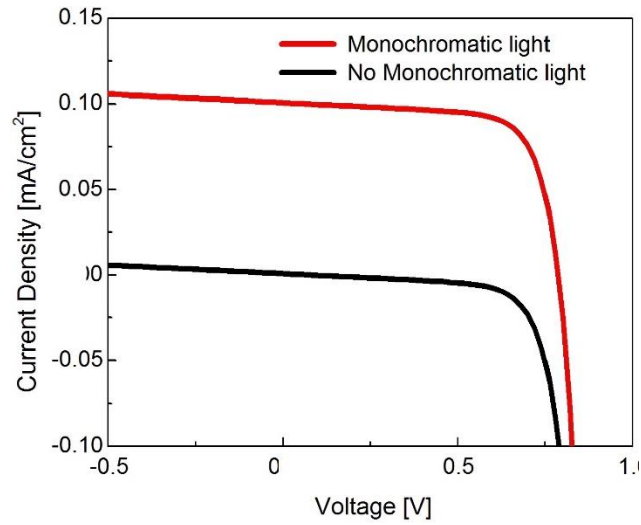


図 3-29 実際に測定される 2 つの電流－電圧特性

トップセルの場合と異なり、バイアス光の ON/OFF で電流－電圧特性が大きく変化している。これはボトムセルのシャント抵抗が小さいため漏れ電流が非常に大きく、電流律速がボトムセルからトップセルに変化しているためである。バイアス光を照射しているのはトップセルより、トップセルに電流律速がかかっていればその応答が見られることになる。その信号が図 3-29 の(a)という形になって表れている。

SR-V データはこれらの電流差分であるため、その差分を取ると図 3-30 のようになる。

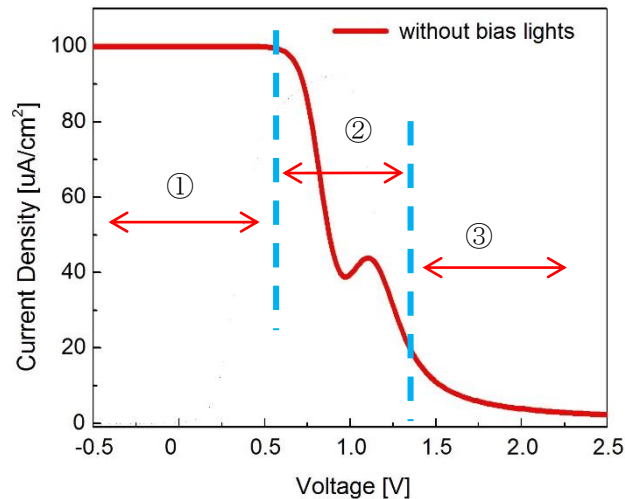


図 3-30 ボトムセルの SR-V データ

この図も、電流と電圧の大きさの違いを無視すれば、実験データのボトムセルの SR-V データと形状が一致する。それでは、以下に「I. トップセル」でも使用した理論式を示しながら、各領域に分けてそれぞれ説明をする。

$$J_{bias}(V^{bottom} + \Delta V) = -J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + \Delta V + J(V^{bottom} + \Delta V) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + \Delta V + J(V^{bottom} + \Delta V) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{bottom} + \Delta V + J(V^{bottom} + \Delta V) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-8)$$

$$J_{No\ bias}(V^{bottom}) = -J_{diff,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0} \left[\exp \left\{ \frac{q(V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V^{bottom} + J(V^{bottom}) \cdot R_s}{R_{sh}} \quad (3-9)$$

$$V = V_{oc}^{top} + V^{bottom}$$

$$\Delta V \cong \frac{nkT}{q} \ln \left(\frac{J_0^{top}}{J_{sc}^{top}} + 1 \right) \quad (3-10)$$

J_{sc}^{top} : トップへ照射するバイアス光強度に依存

①の領域では、前述したように電流律速がトップセルにかかってしまっているため、トップセルの反応が見られている。これはボトムセルとトップセルのシャント抵抗を比較したときにトップセルの方が大きいことによる。トップセルに電流律速がかけられ、更にトップセルへACバイアス光を照射していることから、この領域はまさに前項で詳述した「バイアス光あり」そのものとなるため、式としては(3-1), (3-2)の2式を使うことで求められる出力信号となる。よって、トップセルにかけられる電圧が小さいこととシャント抵抗が大きいことから(3-1), (3-2)式の暗電流成分 (exp で効いてくる電流、シャント抵抗による電流) を無視することができるため、 $J_{monochro}$ として出力信号を取得することができる。

②の領域では、先ず一度信号が弱くなり電流が減少している。これは①の領域で説明したようにトップセルにまだ電流が律速されており、トップセルの両端にかかる電圧が増加することで(3-1), (3-2)式の暗電流成分 (exp で効いてくる電流) が大きくなるため、 $J_{monochro}$ の影響をほぼ無視することができるようになるため、差分をとった信号は小さくなっていく。そのため、出力電流が小さくなっていく。これは前項の「バイアス光あり」で説明をしたものと同じである。しかし電流が一度減少した後に、もう一度出力電流が増加している。これは電流律速がトップセルからボトムセルへ移行したことにより、これまで(3-1), (3-2)式を用いて出力信号を求めていたが、本項「I. トップセル」で用いた(3-5), (3-6)式と同様な形をした(3-8), (3-9)式を使用しなければならない。すると「I. トップセル」でも述べたように、(3-10)式で表される ΔV による効果が生じるため、出力信号の電流が一度減少した後に、再度増加するという現象が起きる。

③の領域では、「I. トップセル」でも述べたように、(3-10)式で表される ΔV による電圧シフトの効果が小さくなってしまい、(3-8), (3-9)式がほぼ同等の値で近似できるようになるため、両者の差分が0に近づいていく。

前項では、SR-V データが任意の波長について計測可能であることを示した。その結果は本項の計測にも適用できるため、この証明については割愛する。

3-4 セルパラメータ抽出の計算手法と従来法との比較

3-4-1 自己無撞着によるフィッティング

3-2 節では、これまで行われてきた各サブセルの電気特性を抽出する手法とその問題点を述べた。問題点を簡潔にまとめると、①各サブセル間の影響を厳密に考慮することが難しい、②抽出できるパラメータに限りが生じてしまう、となる。そこで、それら問題点を解決するために 3-3 節で説明を行った新規評価法の SR-V 法で得られた各サブセルの電流-電圧特性を用いる。そのデータからどのようにパラメータを抽出するのだが、非線形最小二乗法を用いたフィッティングによって行う。非線形最小二乗法の詳細については第 4 章に譲る。ここでは問題点をどのようにして解決するかについて述べる。

まず①の各サブセル間の影響をどのように考慮するのだが、これは自己無撞着な計算によって解決することができる。フィッティングの全体像を図 3-31 に示す。

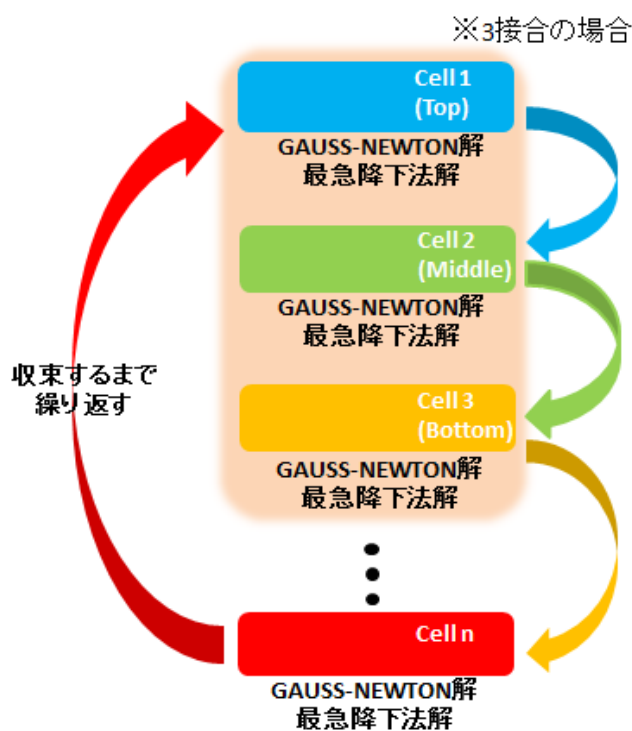


図 3-31 自己無撞着な計算によるパラメータ抽出

3 接合であれば、先ずトップセルの SR-V データに一度フィッティングをかける。その後、ミドルセルの SR-V データにフィッティングをかけ、同様にボトムセルにもフィッティングをかける。ボトムセルのフィッティングが終了した時点で、再度トップセルのフィッティングに戻り、同じ過程を繰り返す。このようにして各サブセルのフィッティングパラメータが殆ど変化をしなくなった時点でフィッティングを終了する。このような自己無撞着な計算をすることで、各サブセルの影響を常に考慮しながらパラメータを抽出することが可能となる。このような計算により問題となっていた各サブセル間の影響を無視することなくパ

ラメータを抽出することができる。

この自己無撞着な計算を用いれば、仮にパラメータを増やしたとしてもフィッティングによって収束するまで計算を行えば原理的には抽出が可能である。つまり、抽出できるパラメータに限りが生じることはない。

3-4-2 等価回路モデル

それでは実際に抽出する回路パラメータだが、太陽電池を等価回路モデルで置き換えた際に必要となるダイオード係数、抵抗などである。抽出する際に使用する等価回路モデルを以下に示す。

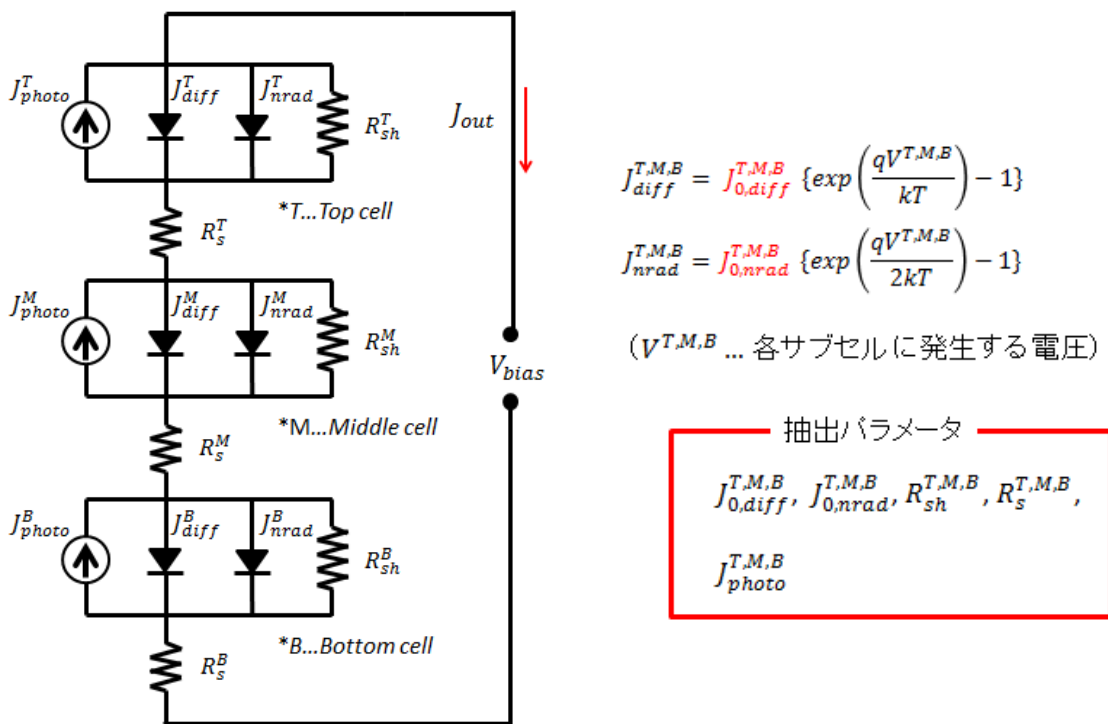


図 3-32 等価回路モデルと抽出パラメータ

図 3-32 の等価回路モデルは 3-3 節で示したものと同一である。抽出するパラメータは、 $J_{01}^{T,M,B} [A/cm^2]$: 拡散電流係数、 $J_{02}^{T,M,B} [A/cm^2]$: 非発光再結合電流係数、 $J_{photo}^{T,M,B} [A/cm^2]$: AC バイアス光によって生じた電流、 $R_s^{T,M,B} [\Omega cm^2]$: 直列抵抗、 $R_{sh}^{T,M,B} [\Omega cm^2]$: ショント抵抗、の 5 個である。2 接合であれば合計 10 個、3 接合であれば合計 15 個のパラメータをフィッティングによって抽出する。

3-4-3 従来法との比較

3-4-1・3-4-2 項において本論文で提案する各サブセルの電気パラメータを抽出する方法論に関して述べたが、これと 3-2 節で述べた従来法との違いを明確化したものが、図 3-33 である。

	Suns-Voc 法	EL 法	SR-V 法
拡散係数： J_{01}	△	○	○
非発光再結合係数： J_{02}	△	○	○
直列抵抗： R_s	×	×	○
並列抵抗： R_{sh}	×	×	○
真の量子効率： J_{photo}	×	×	○
抽出時間	○	○	△

図 3-33 従来法と新規手法（SR-V 法）との比較

Suns-Voc 法では、測定対象となっているサブセル以外の影響やルミネッセンスカップリングによる影響を受けてしまい、拡散係数 J_{01} と非発光再結合係数 J_{02} を正確に導くことはできない。また、直列抵抗や並列抵抗の抽出もできない。EL 法では Suns-Voc 法よりも改善されて、拡散係数 J_{01} と非発光再結合係数 J_{02} を抽出することはできても、抵抗成分までは抽出ができない。それらに対して SR-V 法では、各サブセルの電流—電圧特性にフィッティングしているため、全てのパラメータを抽出することが可能となる。本当に可能なのかについては、第 4 章で示す。

ただし、現在のところ SR-V 法でのフィッティングには時間が多くかかりすぎてしまう。これは、第 4 章でも示す Fortran, C, LTspice という 3 つを接続させてプログラムを走らせるためである。中でも LTspice の処理速度に依存していることもあり、今後は LTspice に依存することのないプログラムコードへの改善が必要となる。

参考文献

- [1] S. H. Lim, K. O'Brien, E. H. Steenbergen, Jing-Jing Li, D. Ding, and Yong-Hang Zhang, Photovoltaic Specialists Conference(PVSC), 2010 35th IEEE.
- [2] S. Roensch, R. Hoheisel, F. Dimroth, and A. W. Bett, Appl. Phys. Lett. **98**, 251113 (2011).
- [3] Uwe Rau, Phys. Rev. B **76**, 085303 (2007).
- [4] 多接合セル評価装置カタログ ALIS A-500, タカノ株式会社.
- [5] S. Tomah, A. Ogura, M. Ohba, and Y. Okada, Prog. Photovolt: Res. Appl. ; DOI: 10.1002/pip.2392.
- [6] Linear Technology, LTSPICE IV; <http://www.linear.com/designtools/software/>
- [7] M. Meusel, C. Baur, G. Letay, A.W. Bett, W. Warta, and E. Fernandez, Prog. Photovolt: Res. Appl., **11** (2003) 499.
- [8] A. Ogura, S. Tomah, M. Ohba, and Y. Okada, Jpn. J. Appl. Phys. (submitted).

第4章

フィッティングアルゴリズムの 構築と検証

第4章 フィッティングアルゴリズムの構築と検証

4-1 概要

あるデータ群から未知のパラメータを抽出するためには、計算アルゴリズムを使用しなければならない。一般的に広く使用されているフィッティングのアルゴリズムは最小二乗法である。最小二乗法の中でも、データのばらつきによって線形最小二乗法と非線形最小二乗法のどちらかを選択できるが、これは未知パラメータを抽出する際にどのようなモデルを立てるかで決定される。第3章で示した太陽電池の等価回路モデルは明らかに非線形の曲線となることから、必然的に非線形最小二乗法を使用しなければならない。

本章では、第3章で得られた SR-V データを用いて多接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気特性を非線形最小二乗法によって抽出できることを示す。まず、非線形最小二乗法の中でも最も安定性に優れているといわれる Powell Hybrid 法について説明する。その後、自作したフィッティングプログラムのロバスト性を示し、実際に実験データへフィッティングし、パラメータを抽出する。パラメータ抽出は3章で述べた「バイアス光ありの SR-V データ」に対してと、「バイアス光なしの SR-V データ」の2つで行い、それぞれの違いについて説明する。

4-2 フィッティングアルゴリズム

4-2-1 非線形最小二乗法 Powell Hybrid 法^{[1], [2]}

最小二乗法は、実験データを解析し、そのデータの元となっている何かしらのパラメータを抽出する最も基本的な方法として広く利用されている。太陽電池の電流－電圧特性を表す関数形は非線形問題であるため、非線形最小二乗法を適用しなければならない。非線形問題のデータ解析の場合、種々のパラメータを反復改良して最適化をする必要がある。しかし、解析途中で抽出パラメータが収束せずに発散してしまう場合もあり、必ず真の解を抽出することができるとは限らない。そこで、収束安定化のために種々のアルゴリズムが考案されている。

実用的な数値解法手法としては、Gauss-Newton 法やそれを変形した方法が主に使用されており、その1つである Marquardt 法および修正 Marquardt 法による非線形最小二乗法がある。しかしそれらは、ヤコビアン行列を解析的に求めなければならない。これは未知パラメータを抽出する前に立てるモデルが超越方程式となってしまうことを要求する。しかし多接合タンデム太陽電池の等価回路モデルは、直列抵抗が含まれてしまうと両辺に電流成分が現れてしまい、超越方程式となってしまう。そうすると、Marquardt 法や修正 Marquardt 法などではパラメータ抽出ができなくなってしまう。そこでここでは、ヤコビアン行列を直接計算せずに逐次補正してもパラメータを抽出できることを特徴とする Powell のハイブリッド法 (Hybrid method) を使用する。Gauss-Newton 法の正規方程式

の解法には修正 Gram-Schmidt 法による QR 分解を用いた。Powell のハイブリッド法に関する説明をする前に、最小二乗法について簡単に触れておく。

最小二乗法とは、 n 個の測定値 y_i とフィッティングをするモデル関数を $f_i(\mathbf{x}^k)$ とした時、

$$S(\mathbf{x}^k) = \sum_{i=1}^n w_i [y_i - f_i(\mathbf{x}^k)]^2$$

で表される重み (w_i) 付きの残差二乗和を最小にするパラメータ \mathbf{x} を見いだす方法である。ここで、それぞれのパラメータが上式のどの文字に対応するかを明確にしておく。

まず、実験で得られた SR-V データのある電圧における電流値は y_i に対応する。小文字 i は電圧に対応する。等価回路モデルから計算される SR-V データの電流値は $f_i(\mathbf{x}^k)$ に対応する。つまり、 $f_i(\mathbf{x}^k)$ はシミュレーションによって計算される。 \mathbf{x}^k は抽出するパラメータに対応し、第 3 章で述べたダイオード係数、直列抵抗などを表す。 \mathbf{x}^k の小文字 k は、フィッティングの繰り返し回数を表す。小文字 n はデータ総数に対応し、例えばフィッティングをする電圧範囲が 0~2.0V で 0.01V 刻みの時、データ総数は 201 となるので、 n は 201 となる。 w_i は、あるデータに対してどれだけ重みをつけるかを表しているが、今回のフィッティングではどのデータも平等に扱うとして重みは一律「1」とした。これは次のような理由で扱うことが可能となる。重み w_i の定義式は、

$$w_i = \sigma_0^2 / \sigma_i^2 \quad (i = 1 \sim n)$$

となっている。上式の σ_i^2 とは測定値の誤差の分散を表し、 σ_0^2 は任意に選んだ既知の比例定数である。ここで σ_i^2 が全ての i に対してほぼ揃っているのであれば、 $\sigma_0^2 = \sigma_i^2$ とすることで、すべての重み w_i を一律 1 にすることができる。今回の σ_i は 1.0×10^{-4} として設定したので、 σ_0 も同じ値となる。

また最小二乗法が理論的な基盤を持つためには、幾つかの前提を設ける必要がある。すなわち、次のような前提を設定する。

【前提 1】：測定値の誤差

$$\varepsilon_i = y_i - y_i^0 \quad (i = 1 \sim n)$$

には、偏りがない。すなわち、

$$\langle \varepsilon_i \rangle = 0 \quad (i = 1 \sim n)$$

である。

【前提 2】：測定の誤差の分散は既値である。

$$\langle \varepsilon_i^2 \rangle = \sigma_i^2 \quad (i = 1 \sim n)$$

【前提 3】：各測定は互いに独立であり、共分散はゼロとする。

$$\langle \varepsilon_i \varepsilon_{i'} \rangle = 0 \quad (i \neq i', i = 1 \sim n, i' = 1 \sim n)$$

【前提 4】：誤差の分布形は正規分布（Gauss 分布）である。

$$P(\varepsilon_i) = (2\pi\sigma_i^2)^{-1/2} \exp(-\varepsilon_i^2/2\sigma_i^2) \quad (i = 1 \sim n)$$

【前提 5】：m 個（ただし $m < n$ ）のパラメータを含むモデル関数 $f(\mathbf{x})$ が知られていて、測定量の真の値 y_i^0 を近似誤差なく再現することのできるパラメータの組 \mathbf{x}^0 が存在する。

$$y_i^0 \equiv f(\mathbf{x}^0) \quad (i = 1 \sim n)$$

以上の 5 個の前提のもとでパラメータ \mathbf{x} を抽出するアルゴリズムが最小二乗法となる。

Powell のハイブリッド法は前述した Gauss-Newton 法と、最急降下法と呼ばれる解法とを組み合わせるパラメータ変分量を計算していく。そこで次に、これら最急降下法と Gauss-Newton 法について説明する。

最急降下法とはその名の通り、最も残差二乗和が減少する方向にパラメータを変化させる方法である。ここでは理解を容易にするため、パラメータが 1 つである場合について考える。最も残差二乗和 $S(x^k)$ が減少する方向は、残差二乗和 $S(x^k)$ の微分係数の符号を逆転させた $-\frac{dS(x)}{dx}$ で与えられる。パラメータがどのように推移していくかは図 4-1 を用いて考える。

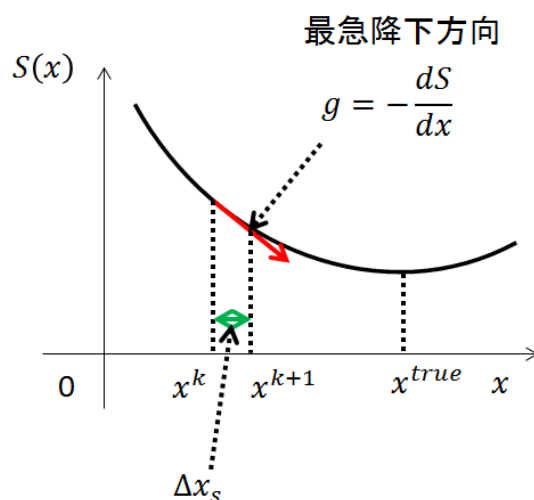


図 4-1 最急降下解 Δx_s について

横軸はパラメータ値 x^k で、縦軸は残差二乗和 $S(x^k)$ である。フィッティング回数 k 回目から、次にどのようにしてパラメータを変化させて $k+1$ 回目にするかという Δx_s （最急降下解）を求めなければならない。フィッティング回数 $k+1$ 回目と k 回目のパラメータ値、 x^{k+1} と x^k の関係は、

$$\begin{aligned} x^{k+1} &= x^k + \Delta x_s \\ &= x^k + \alpha g \end{aligned}$$

で与えられる。ここで Δx_s は最急降下方向で表されるので、必ず $g = -\frac{dS(x)}{dx}$ の成分を含んでいる。つまり、その最急降下方向に向かってどれだけ動かさなければならないかを示している α さえ求めればよいことになる。上式 x^{k+1} を残差二乗和 $S(x^{k+1})$ に代入すると

$$S(x^{k+1}) = S(x^k + \alpha g)$$

となり、この式は x^k と g は既値であるため、 α の関数と見ることができる。上式が最小になる点は停留点であるため（実際に最小点となるかは二次微分などを計算しなければわからない）、

$$\frac{dS(x^k + \alpha g)}{d\alpha} = 0$$

上式が満たされる α を求めればよい。上式に残差二乗和 $S(x^k)$ の元々の式を代入すると、

$$\frac{dS(x^k + \alpha g)}{d\alpha} = \frac{d \sum_{i=1}^n [y_i - f_i(x^k + \alpha g)]^2}{d\alpha}$$

と表すことができる。ここで αg は非常に小さいとして、 $f_i(x^k + \alpha g)$ を一次のテーラー級数展開で近似をすると、

$$\frac{dS(x^k + \alpha g)}{d\alpha} \cong \frac{d \sum_{i=1}^n [y_i - f_i(x^k) - \alpha g \frac{df_i}{dx}]^2}{d\alpha} = 0$$

という式で表すことができる。これから α を求めることができるので、最終的に最急降下解 $\Delta x_s = \alpha g$ は、次式で与えられる。

$$\therefore \Delta x_s = \left(\frac{\sum_{i=1}^n (y_i - f_i(x^k)) g \frac{df_i}{dx}}{\sum_{i=1}^n g^2 \left(\frac{df_i}{dx} \right)^2} \right) g$$

もう1つの Gauss-Newton 法も最急降下法と同様、抽出するパラメータが1つである場合について考える。先ず Gauss-Newton 法の出発点として、残差二乗和 $S(x^k)$ が最小値を取るということは、その微分係数 $\frac{dS(x^k)}{dx}$ が、ある x^{true} （抽出したい真のパラメータ）において次式を満たすと考える。

$$\left. \frac{dS(x)}{dx} \right|_{x=x^{true}} = 0$$

最急降下法の説明でも述べたが、上式はあくまで停留点であるため、実際に極小値を取るかは二次微分などをもって確認しなければならない。

この x^{true} に向かって、どのようにパラメータを変化させていけばよいかを求めるが Gauss-Newton 法である。パラメータの推移に関しては図 4-2 を用いて説明する。

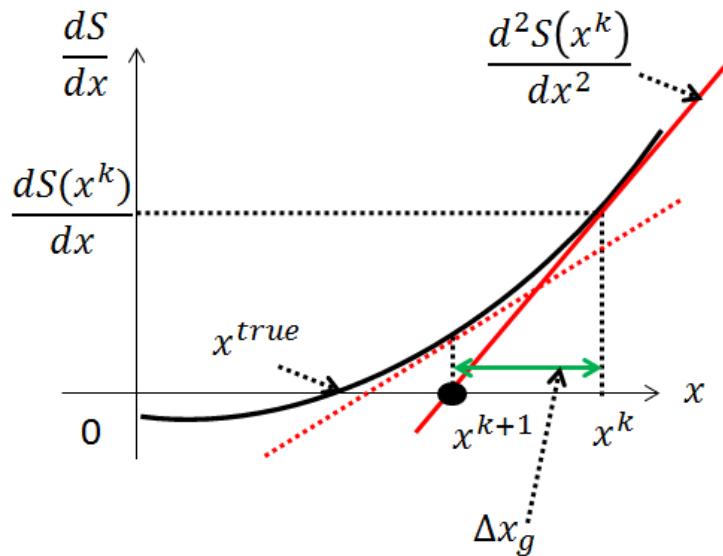


図 4-2 Gauss-Newton 解 Δx_g について

横軸はパラメータ x^k で、縦軸は残差二乗和の微分係数 $\frac{dS(x^k)}{dx}$ である。最終的に求めたいパラメータ値 x^{true} は、横軸との交点になる。ここで求めるのは、フィッティング回数 k 回目からどのようにパラメータを変化させて $k+1$ 回目とするか、というパラメータ変分量 Δx_g となる。この手法は、数値解析でよく使用される Newton-Raphson 法と同様である。よって、 $(x^k, \frac{dS(x^k)}{dx})$ での微分を取り、その一次関数（赤太線）と横軸との交点を求めると次式のように表せる。

$$\frac{d^2S(x^k)}{dx^2}(x^{k+1} - x^k) = -\frac{dS(x^k)}{dx}$$

両辺に残差二乗和 $S(x^k)$ を代入すると、

$$-\frac{dS(x^k)}{dx} = 2 \sum_{i=1}^n \frac{df_i}{dx} (y_i - f_i(x^k))$$

$$\frac{d^2S(x^k)}{dx^2} = 2 \sum_{i=1}^n \left[\left(\frac{df_i}{dx} \right)^2 - \frac{d^2f_i}{dx^2} (y_i - f_i(x^k)) \right]$$

と変形できる。ここで左辺 $\frac{d^2S(x^k)}{dx^2}$ の項の中にモデル関数 $f_i(x^k)$ の二次微分 $\frac{d^2f_i}{dx^2}$ が現れている。

この部分はパラメータが n 個あれば $n \times n$ の二次偏導関数を作る正方行列となる。これをヘッセ行列と呼ぶ。Gauss-Newton 法は、この二次偏導関数を無視して計算する。

すると、左辺 $\frac{d^2S(x^k)}{dx^2}$ は次式で表すことができる。

$$\frac{d^2S(x^k)}{dx^2} = 2 \sum_{i=1}^n \left[\left(\frac{df_i}{dx} \right)^2 - \frac{d^2f_i}{dx^2} (y_i - f_i(x^k)) \right] \cong 2 \sum_{i=1}^n \left(\frac{df_i}{dx} \right)^2$$

Gauss-Newton 解 Δx_g は次式で定義されている。

$$\Delta x_g = x^{k+1} - x^k$$

以上より、 Δx_g を求めると次式のように表される。

$$\therefore \Delta x_g = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{df_i}{dx} (y_i - f_i(x^k))}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{df_i}{dx} \right)^2}$$

ここまではパラメータが 1 つであるという条件で求めてきたが、大抵パラメータは複数ある。その時はこのような式ではなく行列式を用いて計算を行う。行列式によって解を得るとき、Gauss-Newton 解は次のようなマトリクスを解くことになる。

$$\begin{array}{l} V^c=-0.5V \\ V^c=-0.4V \\ V^c=-0.3V \\ \vdots \\ V^c=1V \\ \vdots \\ V^c=3V \end{array} \left(\begin{array}{ccccc} \frac{\partial f_{V^c=-0.5}^{[1]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.5}^{[1]}}{\partial J_{02}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.5}^{[1]}}{\partial R_s}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.5}^{[1]}}{\partial R_{sh}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.5}^{[1]}}{\partial J_{photo}}(x^k) \\ \frac{\partial f_{V^c=-0.4}^{[2]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.4}^{[2]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.4}^{[2]}}{\partial R_s}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.4}^{[2]}}{\partial R_{sh}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.4}^{[2]}}{\partial J_{photo}}(x^k) \\ \frac{\partial f_{V^c=-0.3}^{[3]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.3}^{[3]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.3}^{[3]}}{\partial R_s}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.3}^{[3]}}{\partial R_{sh}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=-0.3}^{[3]}}{\partial J_{photo}}(x^k) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \frac{\partial f_{V^c=1}^{[15]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=1}^{[15]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=1}^{[15]}}{\partial R_s}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=1}^{[15]}}{\partial R_{sh}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=1}^{[15]}}{\partial J_{photo}}(x^k) \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \frac{\partial f_{V^c=3}^{[35]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=3}^{[35]}}{\partial J_{01}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=3}^{[35]}}{\partial R_s}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=3}^{[35]}}{\partial R_{sh}}(x^k) & \frac{\partial f_{V^c=3}^{[35]}}{\partial J_{photo}}(x^k) \end{array} \right) \times \begin{array}{c} \Delta J_{01} \\ \Delta J_{02} \\ \Delta R_s \\ \Delta R_{sh} \\ \Delta J_{photo} \end{array} = \begin{array}{c} y_{V^c=-0.5} - f_{V^c=-0.5}^{[1]}(x^k) \\ y_{V^c=-0.4} - f_{V^c=-0.4}^{[2]}(x^k) \\ y_{V^c=-0.3} - f_{V^c=-0.3}^{[3]}(x^k) \\ \vdots \\ y_{V^c=1} - f_{V^c=1}^{[15]}(x^k) \\ \vdots \\ y_{V^c=3} - f_{V^c=3}^{[35]}(x^k) \end{array}$$

式中に現れる V^c は、3 接合であればトップセル・ミドルセル・ボトムセルのどれをフィッティングしているかを表す。求めるパラメータは 5 個、ここではフィッティング電圧範囲が 0.5~3.0V (0.1V 刻み、ただし 0V は除く) としているので、マトリクスは 35×5 となる。この左辺のモデル関数 $f_i(x^k)$ を各パラメータで微分した要素で構成されているマトリクスのことをヤコビアン行列と呼ぶ。通常、ヤコビアン行列は A と記述され、その要素を $A_{ij} = \frac{\partial f_i(x^k)}{\partial x_j}$ と書く。

Powell のハイブリッド法は、以上 2 つの最急降下法と Gauss-Newton 法を組み合わせる解を求めていく。その特徴は次のようになる。

- ① データの線形性が大きければ Gauss-Newton 法を採用し、非線形性が大きい場合は最急降下法に近くづくように両者を折衷する。Gauss-Newton 法は前述したように、ヘッ

セ行列（二次偏導関数）を無視して解を求めている。つまり既にデータの線形性を仮定していることになるため、線形性が大きい場合はこちらの解を用いれば、より早くパラメータが収束していくことになる。ただデータの非線形性が大きくなると Gauss-Newton 法では誤差が大きくなってしまうため、最急降下法によって補正する。

- ② 修正ベクトル Δx の長さ d （今後ステップ幅と呼ぶ）に上限と下限を設けるとともに、長さを非線形の程度に応じて調節し、収束を安定化する（今回自作したプログラムコードでは、このステップ幅の大きさを調節せずにフィッティングを行う）。
- ③ ハイブリッド法は、ヤコビアン行列を直接計算しても解法できるので、応用性に優れる。

最後に、最急降下法と Gauss-Newton 法の解をどのようにして組み合わせていくのかを説明する。これは、上述した特徴②の修正ベクトル Δx の長さ d に関係する。このステップ幅 d は、あらかじめ上限値と下限値が設定されている。このステップ幅 d の大きさと、修正ベクトル Δx の大小関係を比較しながら変分量を決めていく。その様子を図 4-3 を用いて説明する。

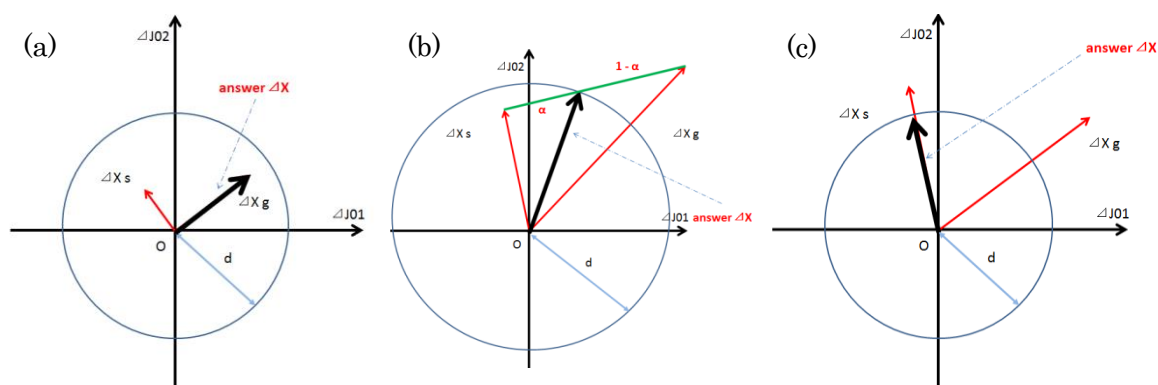


図 4-3 ステップ幅 d と修正ベクトル Δx の関係

図 4-3 はパラメータが 2 個の場合で考えており、横軸・縦軸ともそのパラメータの変分量を表している。半径 d の円は、ステップ幅 d により修正ベクトル Δx の動ける範囲を表している。2 つの解法で求めた Δx_g と Δx_s はそれぞれベクトル量なので、矢印で表示してある。それぞれの図の説明をする前に、 Δx_g と Δx_s のノルムをそれぞれ、 $\|\Delta x_g\|$ と $\|\Delta x_s\|$ で表すことにする。その時、常に $\|\Delta x_g\| \geq \|\Delta x_s\|$ が成立する。

図 4-3(a) は、 $\|\Delta x_g\| \leq d$ の関係が成立している時になる。これはステップ幅 d の内側に $\|\Delta x_g\|$ があるため、データに線形性が強いと判断して Δx_g を採用する。よって、 $\Delta x = \Delta x_g$ となる。

図 4-3(b) は、 $\|\Delta x_s\| \leq d \leq \|\Delta x_g\|$ の関係が成立している時になる。これはデータの線形性・非線形性が混ざっている状態と判断し、両者の中間を採用するように修正ベクトル Δx を求める。よって、 $\|\Delta x\| = d$ を満たしながら、 $\Delta x = \alpha \Delta x_s + (1 - \alpha) \Delta x_g$ となる。

図 4-3(c) は、 $d \leq \|\Delta x_s\|$ の関係が成立している時になる。この時、データは非常に非線形性

が強いということになるため、最急降下解の方向に修正ベクトルを向けることになる。ただし、長さはステップ幅 d となる。よって、 $\Delta x = \frac{\Delta x_s}{\|\Delta x_s\|} d$ となる。

このようにして Gauss-Newton 解と最急降下解を組み合わせて修正ベクトルを求めることになる。ここで重要なのはステップ幅 d をどのようにして決めるかである。この値によって、求める修正ベクトルが大きく変化してしまう。仮にステップ幅 d を極端に大きくしてしまえば、かなりの確率で図 4-3(a)のような状況になってしまい、常に Gauss-Newton 解を採用してしまうことになる。もともとのデータに線形性が強ければ問題にはならないが、非線形性が強いとなると、Gauss-Newton 解では修正ベクトルを誤った方向に導いてしまい、最終的に正しい解に収束しないことが起こり得る。逆に、ステップ幅 d を極端に小さくすると、図 4-3(c)のような状況になってしまい、常に最急降下解を採用してしまうことになるため、修正ベクトルの長さが非常に小さくなってしまい、フィッティングの繰り返し回数が増加してしまい計算時間が長くなってしまう。このような理由で、ステップ幅 d はフィッティングの精度のためにも、計算時間を短くするためにも非常に重要なパラメータとなる。

4-2-2 フローチャート^[3]

ここまででフィッティングをするために必要なことは述べた。3-4-1 項で自己無撞着なアルゴリズムを示し、前項で Powell のハイブリッド法について示した。これまでの研究で様々な手法によって多接合タンデムセルの電気特性を評価してきたが^{[4],[5]}、本論文では上記 2 つを組み合わせたプログラムで電気特性を抽出することを試みる。そのフローチャートを図 4-4 に示す。

このフローチャートは 2 接合タンデム太陽電池の場合について示してある。3 接合の場合も単純にサブセルを 1 つ増やせばよい。このフローチャートでは各サブセルのパラメータをフィッティングする際、5 個のパラメータを同時にフィッティングするようになっているが、実際にフィッティングをする際は別々にフィッティングをかけている。つまり、例えば 2 接合でボトムセルのフィッティングをするときは、① J_{photo}^B をフィッティング、② R_{sh}^B をフィッティング、③ R_s^B をフィッティング、④ J_{01}^B と J_{02}^B を同時にフィッティング、というように①～④を行った後にトップセルのフィッティングを行う、という流れになる。このようにフィッティングを別々で行う理由は、前項で説明をしたステップ幅 d の調節のためである。 R_{sh}^B の桁は $10^2 \sim 10^3$ のため、ステップ幅 d もこの桁に合わせて調節する必要がある。それに対して J_{01}^B の桁は、 $10^{-7} \sim 10^{-4}$ と非常に小さく、ステップ幅 d もこの桁に合わせて調節しなければならない。仮に R_{sh}^B のフィッティングで使用するステップ幅 d のまま J_{01}^B をフィッティングしようとするれば、桁が相当ずれているためすぐにパラメータが異常値になってしまう(前項の最後で述べたような問題が生じる)。このような異常値を防ぐために、各サブセルのパラメータをフィッティングする際、①～④のように別々でフィッティングを行うようにプログラムがコーディングされている。

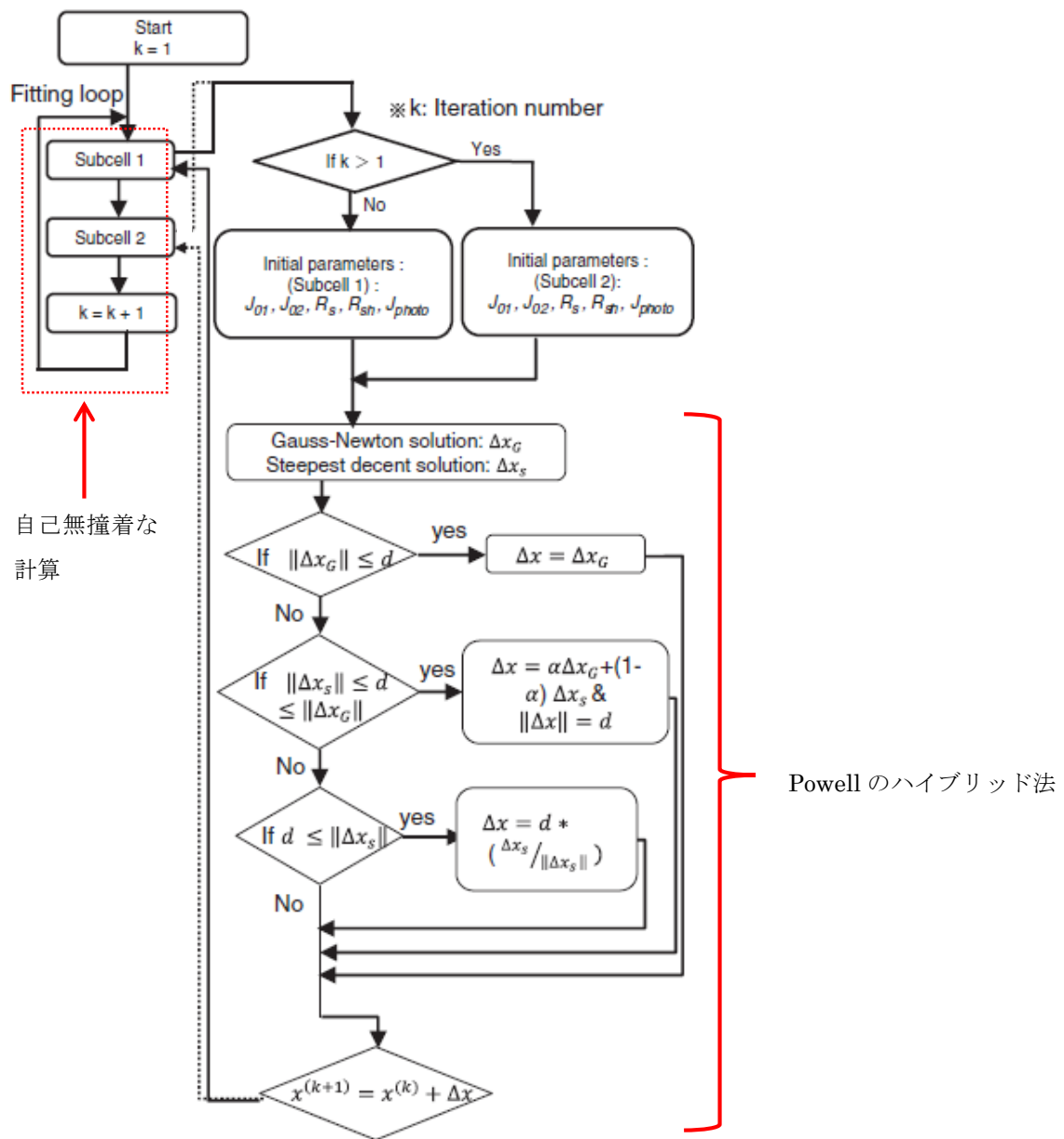


図 4-4 フローチャート (2 接合タンデム太陽電池の場合)

更にコーディングをしたプログラムのもう 1 つの特徴は、1 つのプログラミング言語だけで書かれたものではなく、複数の言語を使用していることである。単接合太陽電池であれば Fortran などコーディングしたプログラムで十分電流-電圧特性を計算することは可能であるが、接合タンデム太陽電池になると一気にその敷居が上がってしまう。超越方程式となってしまうとなおさらである。各サブセルの電流律速を考え、全てのサブセルに同じ電流が流れた時の電圧を計算し、その和を取って電流-電圧特性を得ていくのだが、精度よく計

算するのは中々難しい。そこで、多接合タンデム太陽電池の電流－電圧特性を計算する部分は 3 章でも用いた回路シミュレータソフト LTspice を用いて計算し、その計算して出力された結果を用いてフィッティングを行う、というプログラムコーディングを行った。LTspice で計算された値は、有効数字 15 桁まで正しく出力されるので非常に精度が良い。具体的な流れについては図 4-5 を用いて説明する。

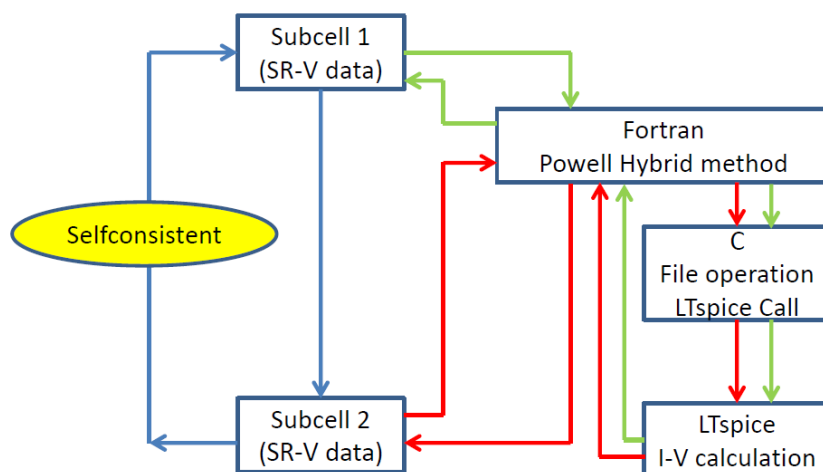


図 4-5 それぞれのプログラムの役割とその流れ

基本的には図 4-4 と同じなのだが、図 4-5 ではどのプログラミング言語が何をするのか、ということを確認している。基本的な主プログラムとなるのが Fortran である。ここで非線形最小二乗法を用いてデータフィッティングの計算を行い、サブセル間をループするように動いている。データフィッティングをするためには、測定して得られた SR-V データとモデリングによって計算された SR-V データが必要だが、そのシミュレーション値のために Fortran から C 言語を呼び出す。呼び出された C 言語から LTspice を呼び出して電流－電圧特性を計算させる。LTspice で計算すると結果を出力するようにしているので、そのデータを用いて再度 Fortran へ戻って最小二乗法によって修正ベクトルを計算し、パラメータを変化させていく。ここで Fortran から LTspice を直接呼び出さなかったのは、C 言語であれば LTspice を容易に呼び出すことができ、また LTspice の回路データが記述されている.net ファイルへの書き込みが容易であること、という利点があったためである。あとは同じサイクルを続けながらフィッティングをしていくという流れになっている。

4-3 パラメータ抽出 I : バイアス光ありのデータ

4-3-1 プログラムコードの検証

それではこれから、コーディングをしたプログラムを使って多接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気特性パラメータを抽出していくのだが、先ずこのプログラムがある程度の精度を持ったものであることをいくつかの試験で確認する。その確認ができた後、実験値の SR-V データへフィッティングをかけパラメータを抽出していく（次節で示す）。使用するデータは 3-3-3 で説明した「バイアス光ありの SR-V データ」である。はじめは 3 接合タンデム太陽電池のフィッティングではなく、2 接合タンデム太陽電池の場合で考える。2 接合 Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge タンデムセルのデータを想定して行う。

ここでの精度確認とは、あらかじめ真の値が分かっているデータに対してフィッティングを行い、初期値から真の値に向かってパラメータが収束していくのかを確認するという作業のことである。測定値を模擬する最初に必要となる SR-V データは、LTspice で計算されたものを使う。LTspice で計算する際に必要となるものは各サブセルのダイオードパラメータであるが、これらの値は第 3 章でも参考にした論文[6]を参考にする。以下にその用いたパラメータ値を示す。

表 4-1 2 接合タンデム太陽電池の各種パラメータ

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-4}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-4}

※ここでの J_{photo} は AC バイアス光 (モノクロ光) によって生成された電流値のことである。

※DC バイアス光によって生成される電流値は、トップセル: $3.0 \times 10^{-3}[A/cm^2]$ 、ボトムセル: $2.0 \times 10^{-3}[A/cm^2]$ としている。

表 4-1 の各種パラメータを真値、つまりフィッティング後に収束させる値とする。

これからは 2 種類のパターンで精度確認を行う。

- ① 全てのパラメータを真値からずらしてフィッティングをかける前に、1 つ 1 つのパラメータだけを大きくずらしてフィッティングをかける。この確認はボトムセルのみで行う。
- ② 全てのパラメータを真値からずらしてフィッティングをかける。

以下、精度確認の結果になる。

- ① ここでの確認は、トップセルのパラメータ値は全て真値に固定しておき、ボトムセルのパラメータを 1 つずつずらしてフィッティングを行う。どれだけずらしてフィッティングを行ったかを表 4-2 に示す。

1桁から2桁の間でパラメータをずらして初期値を設定しフィッティングを行った。その結果を図4-6で示す。

表4-2 ボトムセルパラメータの真値と初期値の違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-4}
Ge	初期値	9.6×10^{-8}	7.9×10^{-7}	0.002	1000	1.0×10^{-3}

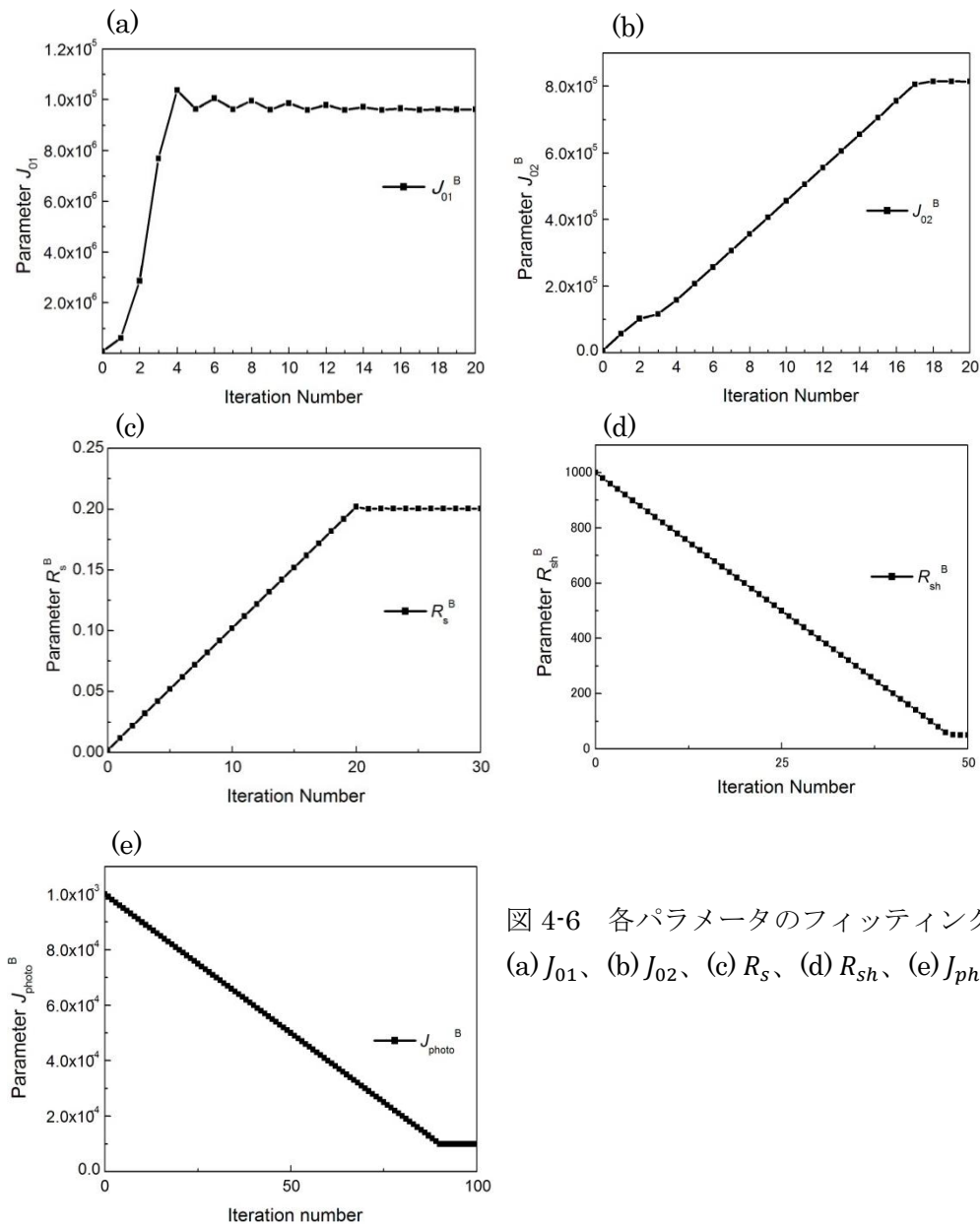


図4-6 各パラメータのフィッティング推移
(a) J_{01} 、(b) J_{02} 、(c) R_s 、(d) R_{sh} 、(e) J_{photo}

全ての図は横軸がフィッティングの繰り返し回数で、縦軸はパラメータ値になる。フィッティングを繰り返していくことで、各パラメータが真値へと収束していく様子が分かる。ただ、このように全てのパラメータを別々で図示するのではなく、図 4-7 のように 1 つの図で今後示すことにする。

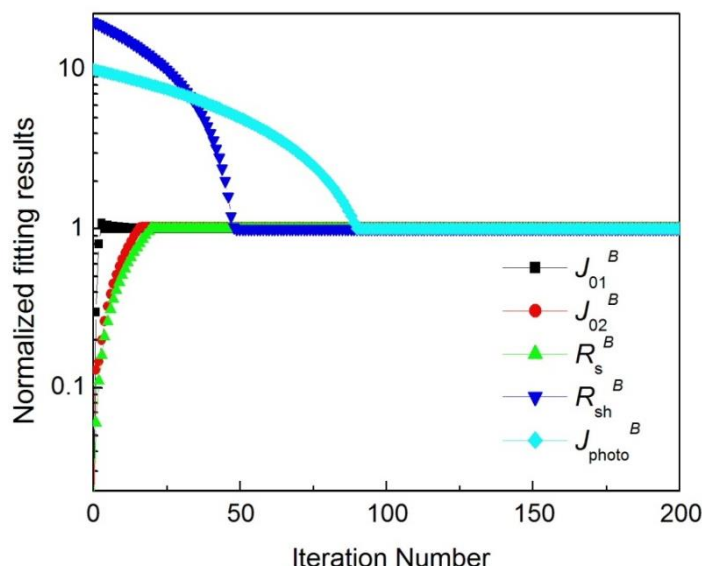


図 4-7 各パラメータのフィッティング推移

図 4-7 は、図 4-6 の変移していく各パラメータをそれぞれの真値で規格化したものになる。つまり、フィッティングした値が真値に収束したとすれば「1」に収束することになる。図 4-7 より、全てのパラメータが「1」に向かって収束しているのが分かるので、精度よくパラメータ抽出ができていていることを示している。これでパラメータが 1 つだけの時にはフィッティングができることを示せた。

- ② 次に、トップセル・ボトムセルの全てのパラメータが真値からずれている時の確認を行う。各パラメータが真値からどの程度ずれているかを以下の表で示す。

表 4-3 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-4}
	初期値	2.2×10^{-19}	1.0×10^{-11}	0.02	2.0×10^5	1.1×10^{-4}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-4}
	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	500	2.0×10^{-4}

※DC バイアス光によって生成される電流値は、トップセル： $3.0 \times 10^{-3}[A/cm^2]$ 、ボトムセル： $2.0 \times 10^{-3}[A/cm^2]$ としている。

表 4-3 のパラメータを用いてフィッティングを行った結果を図 4-8 に示す。

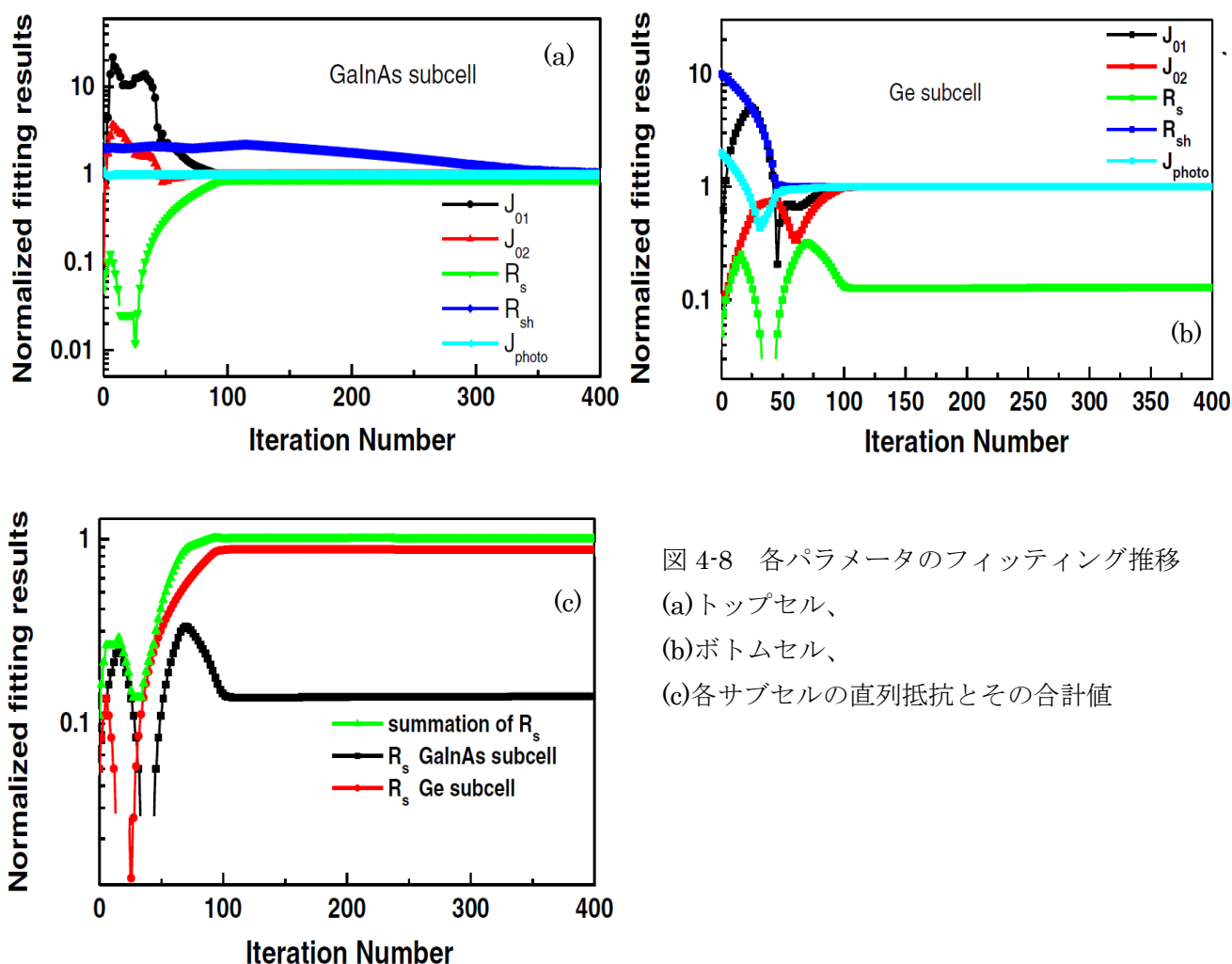


図 4-8 各パラメータのフィッティング推移
(a) トップセル、
(b) ボトムセル、
(c) 各サブセルの直列抵抗とその合計値

図 4-8 より、各サブセルのパラメータが規格化された「1」へ収束している様子が見られるので、精度よくパラメータが抽出されていることが分かる。しかし、直列抵抗は各サブセルとも「1」に向かって収束していない。そこで直列抵抗のみ、別で図示したものが(c)である。その中には直列抵抗の合計値も含んでいる。各サブセルの直列抵抗では正しいパラメータを抽出することはできないが、合計値として考えると規格化された「1」へ収束しているのが分かる（この場合、表 4-3 より $0.4\Omega\text{cm}^2$ である）。これは 3-4-2 項で示した等価回路モデルから考えると、直列抵抗による電圧降下を 1 つにまとめることができってしまうので、どうしても別々のものとして抽出することができない。今回のモデルでは各サブセルの直列抵抗が正しく抽出されなくても、合計値がただしければ収束したこととする。

以上で精度確認の①・②を終了するが、ここで示したフィッティングはあくまで 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデムセルを想定していた。他の組み合わせである、 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ セルや、 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ セルでもフィッティングが可能であることを示しておく必要がある。そこで次は、2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ 、 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ タンデムセルのフィッティング精度を確認する。ただし上記で示したパラメータ 1 つずつを真値からずらして確認する①の作業は省き、全てのパラメータを真値からずらしてフィッティングする作業②のみを行っている。

I. 2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ タンデムセルの場合

各パラメータの真値と初期値は以下のようになっている。

表 4-4 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$J_{02}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$R_s[\Omega\text{cm}^2]$	$R_{sh}[\Omega\text{cm}^2]$	$J_{photo}[\text{A}/\text{cm}^2]$
$\text{In}_{0.99}\text{Ga}_{0.01}\text{P}$	真値	1.5×10^{-26}	4.2×10^{-14}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-4}
	初期値	1.5×10^{-27}	4.2×10^{-15}	0.02	2.0×10^5	1.1×10^{-4}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-4}
	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	500	2.0×10^{-3}

※DC バイアス光によって生成される電流値は、トップセル： $1.0 \times 10^{-3}[\text{A}/\text{cm}^2]$ 、ボトムセル： $0.5 \times 10^{-3}[\text{A}/\text{cm}^2]$ としている。

表 4-4 のパラメータを使ってフィッティングを行った結果を以下に示す。図 4-9 より、 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ の時と同様、非常に精度よくパラメータ抽出ができていることが分かる。

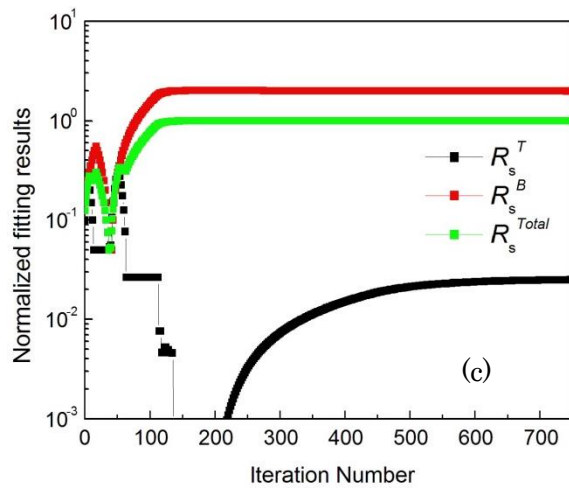
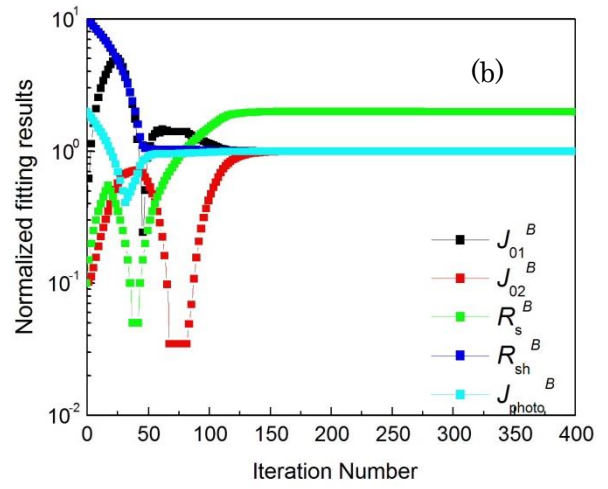
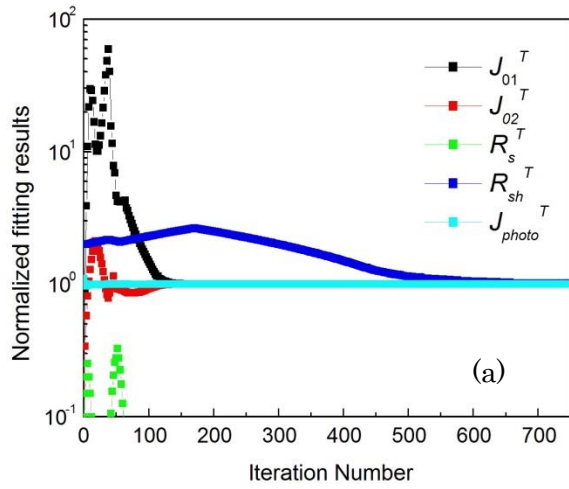


図 4-9 各パラメータのフィッティング推移

(a) トップセル、

(b) ボトムセル、

(c) 各サブセルの直列抵抗とその合計値

II. 2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルの場合

各パラメータの真値と初期値は以下のようにになっている。

表 4-5 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
$\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$	真値	1.5×10^{-26}	4.2×10^{-14}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-9}
	初期値	1.5×10^{-27}	4.2×10^{-15}	0.02	2.0×10^5	1.5×10^{-9}
$\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-9}
	初期値	2.2×10^{-19}	1.0×10^{-11}	0.02	2.0×10^5	1.5×10^{-9}

※DC バイアス光によって生成される電流値は、トップセル： $1.5 \times 10^{-9}[A/cm^2]$ 、ボトムセル： $1.5 \times 10^{-9}[A/cm^2]$ としている。

表 4-5 のパラメータを使ってフィッティングを行った結果を以下に示す。図 4-10 より、これまでとはずいぶん違う収束を見せている。これまでの組み合わせでは滑らかに「1」へ収束していく傾向であったが、今回は「1」周辺でパラメータが振動してしまっている。この原因は、DC バイアス光によって生成される電流値にある。今回設定した DC バイアス光による電流値は、トップセル・ボトムセルともに $1.5 \times 10^{-9} [A/cm^2]$ であり、nA オーダーになっている。これほどまで電流値を小さくした理由は、 $10^{-5} \sim 10^{-4} A$ オーダーではフィッティングができずパラメータが発散してしまうためである。このことに関する詳細は、4-3-3 項で説明を行う。

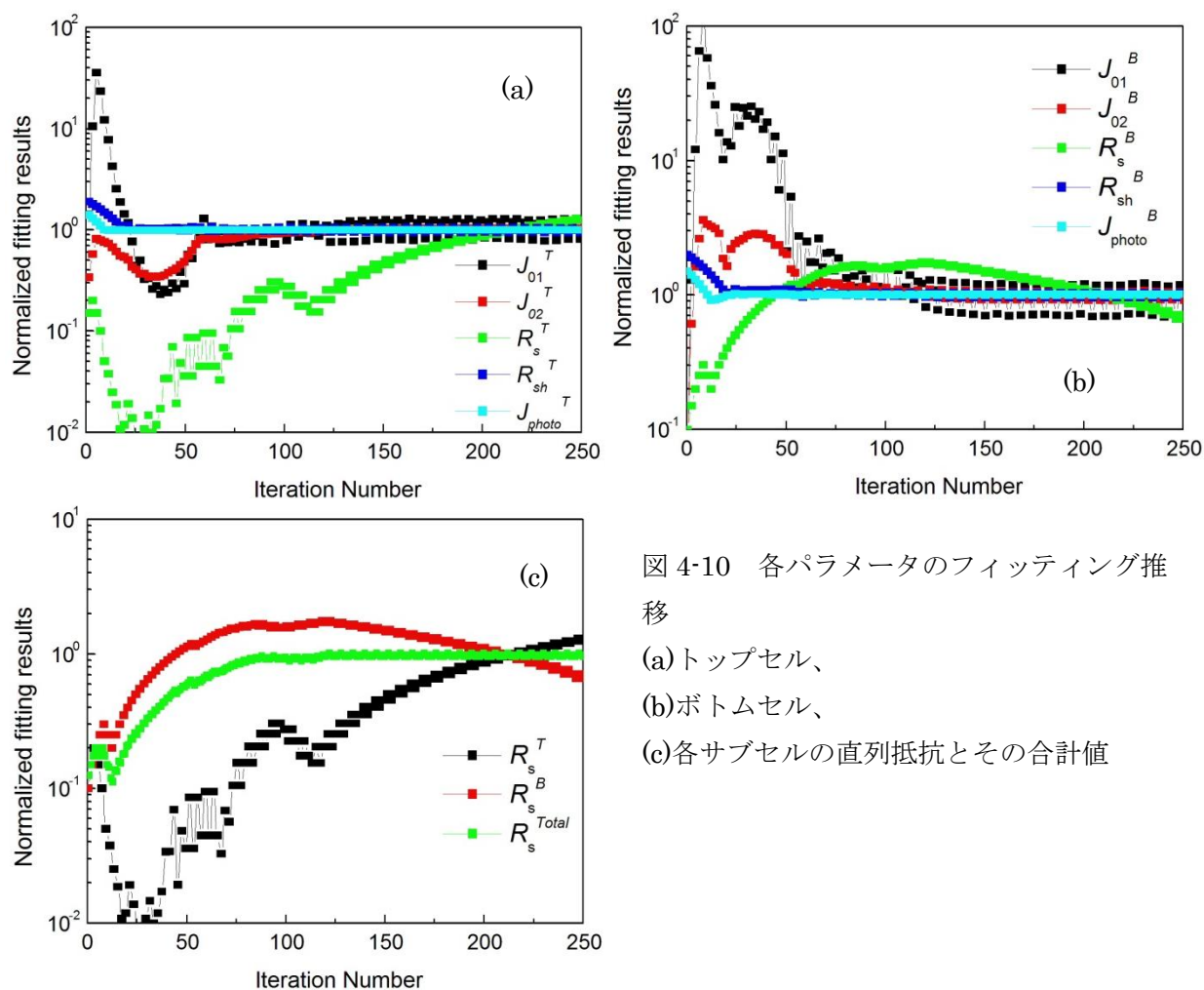


図 4-10 各パラメータのフィッティング推移
 (a) トップセル、
 (b) ボトムセル、
 (c) 各サブセルの直列抵抗とその合計値

4-3-2 実デバイスの評価と解析^[3]

前項では2接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルの組み合わせ以外ではパラメータ抽出が精度よく行われたことを確認したので、次は実験で測定されたSR-Vデータに対してフィッティングを行う。パラメータ抽出をするサンプルは、3-3-3項で示した2接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデムセルを用いる。ここでは、これまでのようにあらかじめ真値が分かっているわけではないので、縦軸はそれぞれのダイオードパラメータのフィッティング値で表示し、それぞれ別のグラフで図示するようにする。図4-11~13が、その結果になる。

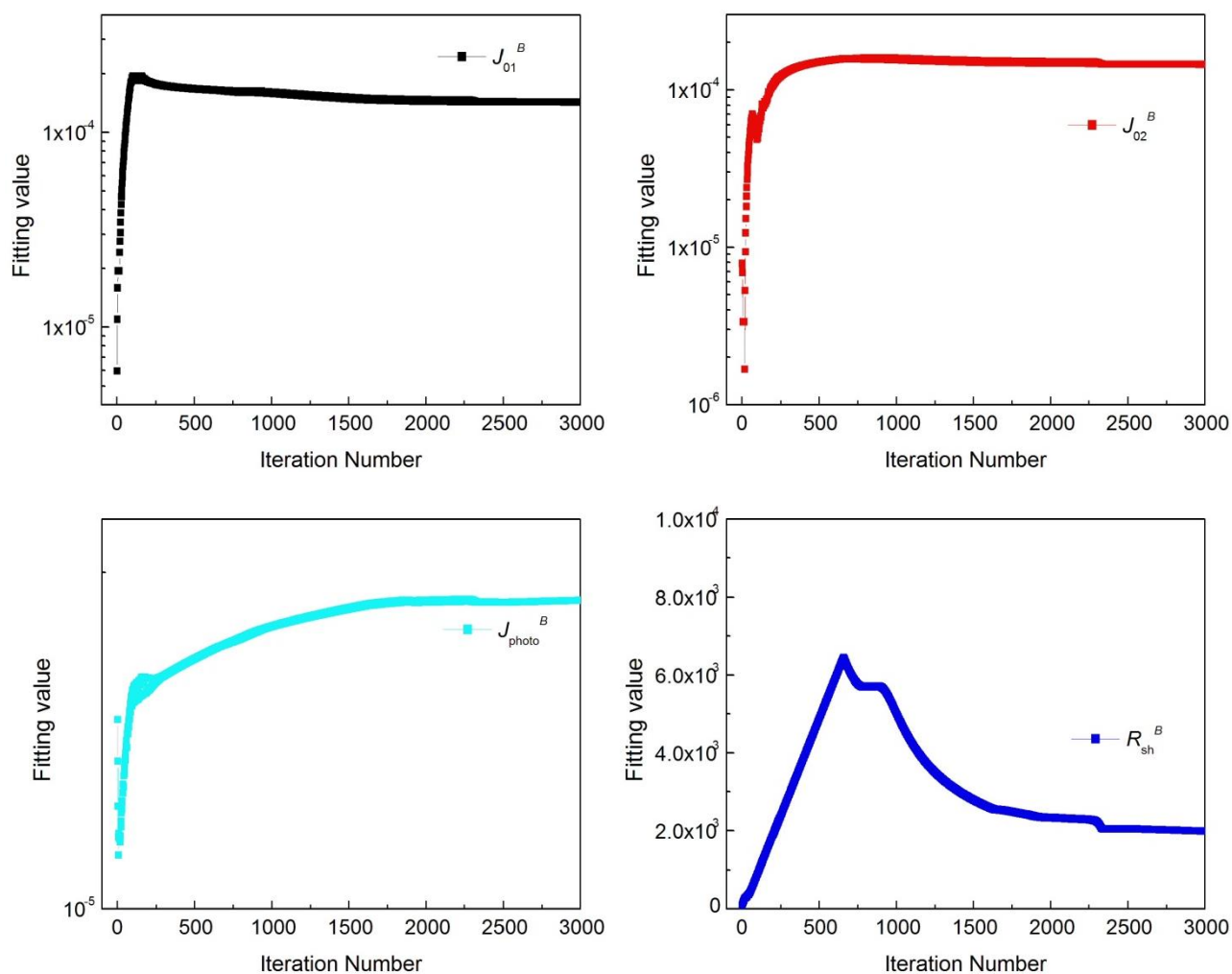


図 4-11 ボトムセル：各パラメータのフィッティング推

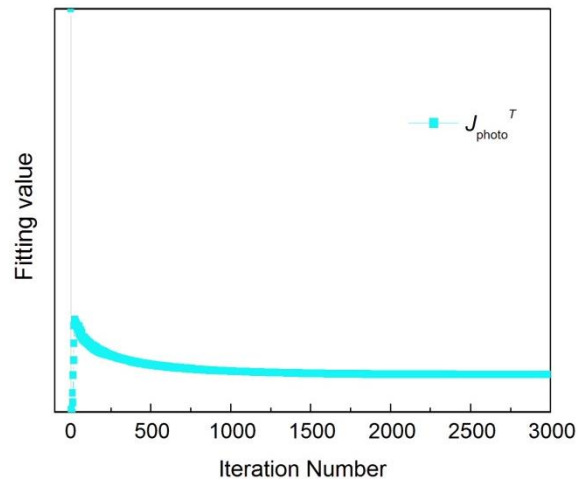
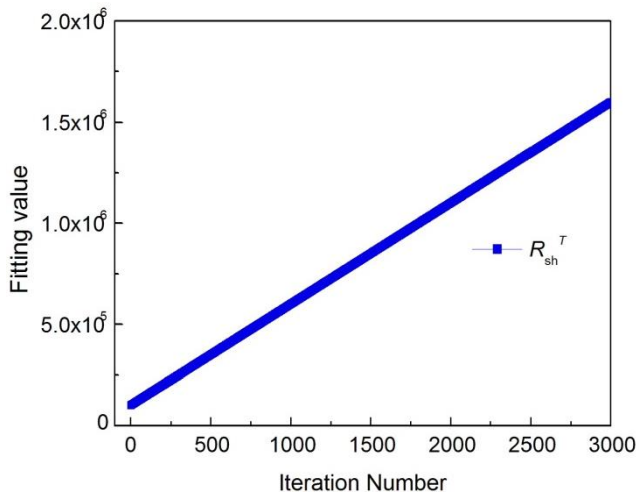
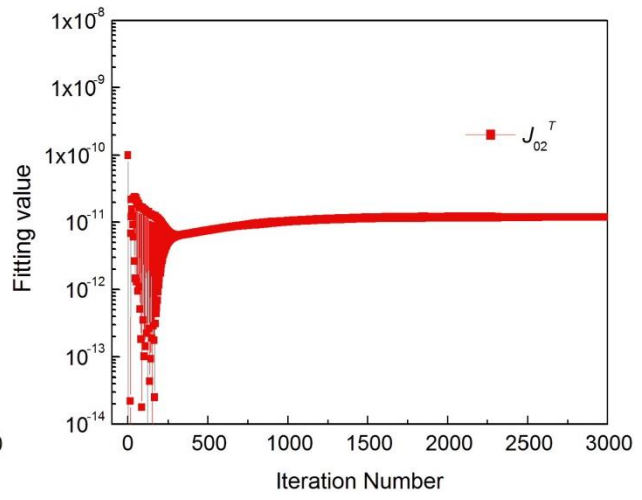
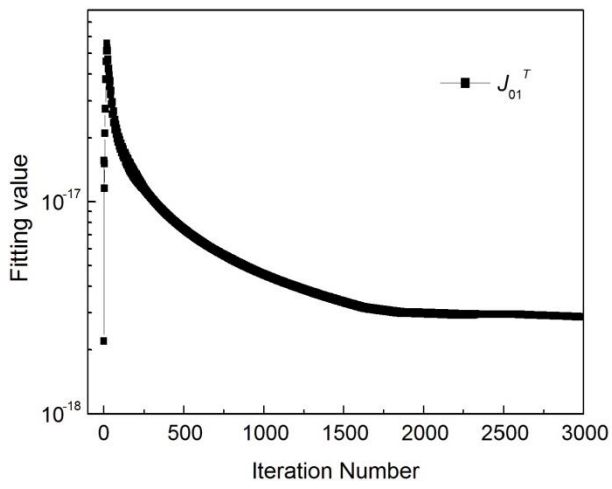


図 4-12 トップセル：各パラメータのフィッティング推移

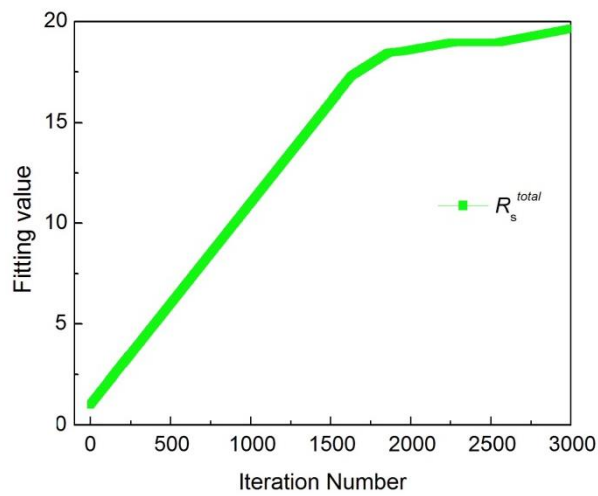


図 4-13 合計直列抵抗のフィッティング推移

図 4-11～13 の最後の値を使用して SR-V データを再現したものが図 4-14 になり、使用したパラメータは表 4-6 に示す。

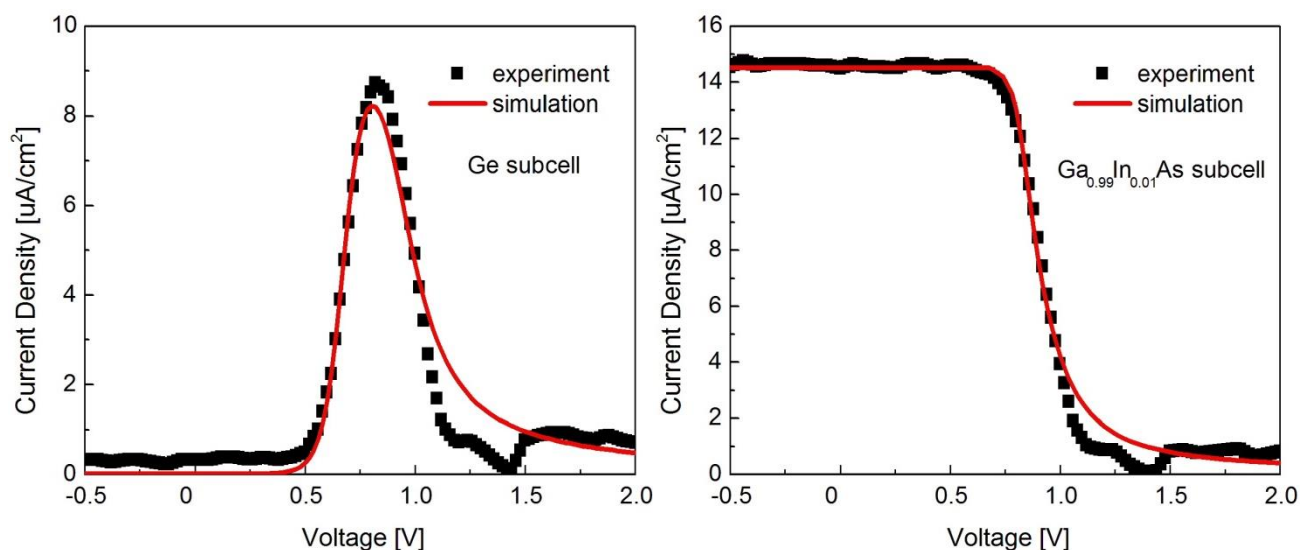


図 4-14 SR-V : 実験データとフィッティングデータの比較

表 4-6 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	初期値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.5	1.0×10^5	1.5×10^{-5}
	収束値	2.86×10^{-19}	1.19×10^{-11}	15.49	1.6×10^7	1.45×10^{-5}
Ge	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-5}	0.5	70	1.5×10^{-5}
	収束値	1.43×10^{-4}	1.44×10^{-4}	4.14	1987	1.73×10^{-5}

図 4-11～13 の中で、特に注意するパラメータはトップセルの並列抵抗と、トップセル・ボトムセルの直列抵抗合計値である。先ずトップセルの並列抵抗だが、収束する気配がない。この理由を考えるために一点確認をしておく。それは、 $J_{01} \cdot J_{02}$ パラメータがほんの僅かに変化したとすると、これらパラメータは電圧が大きい領域では $\exp(qV/nkT)$ で SR-V データに影響を与えてしまうのに対し、並列抵抗は V/R_{sh} という式のため SR-V データに対して大きな影響を与えない、ということである。つまり、 $J_{01} \cdot J_{02}$ パラメータをフィッティングした後に R_{sh} をフィッティングすると、 $J_{01} \cdot J_{02}$ で変化した分を調整しようと大きく変化しようとするため、いつまでも収束しないような傾向になっていると考えられる。この対策としては、 R_{sh} の決定される電圧範囲は低電圧領域と分かっているので、フィッティングする電圧領域を狭くするという事。もう 1 つは、電流-電圧特性があらかじめ測定できる環境であれば、そこからある程度の値を見積もっておき、その値を固定値として使用しながら全てのパラメータを抽出した後、並列抵抗を含めて再度フィッティングを行い、全てのパラメータに大きな変動がないかを確認するという事等があげられる。次に直列抵抗についてだ

が、こちらは最終的に収束する兆しを見せている。しかし、収束している値が実際に考えられるような値ではなく、かなり大きな値で収束している。これは次項で詳しく述べるが、DC バイアス光の設定が不適切だったと考えられる。これはあらかじめ設定しておかなければいけないパラメータであり、今回は $300\mu\text{A}/\text{cm}^2$ で設定をしてフィッティングを行った。この影響が直列抵抗に現れてしまい、フィッティングが正常にできなかったと考えられる。しかし、図 4-14 を見ると SR-V データに対してはある程度フィッティングができていているように見える。つまり、各サブセルの SR-V データを用いて自己無撞着なフィッティング計算を行うことで、各サブセルの電気パラメータを抽出できる可能性を示すことができた。

4-3-3 問題点

前項で 2 接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気パラメータを抽出する方向性を示した。ただ最後に述べた直列抵抗の問題や、4-3-1 項でも $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルでフィッティングをした際にも少しふれたが、「バイアス光ありの SR-V データ」でのフィッティングにはまだ改善点が存在する。ここではその改善すべき点について説明をし、どのようにして解決していくかを述べる。まず解決しなければいけない問題点を以下に列挙する。

- ① フィッティングを開始する際、DC バイアス光によって生成される電流をセットしておく必要がある。
- ② 2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルのパラメータを使用してフィッティングをすると、非現実的な値になってしまう。

上記問題点についてそれぞれ説明する。

- ① フィッティングで抽出する電流値は、あくまで AC バイアス光（モノクロ光）によって生成される電流値であり、DC バイアス光は既知の定数として代入されていなければならない。これらの対応図を以下に示す。

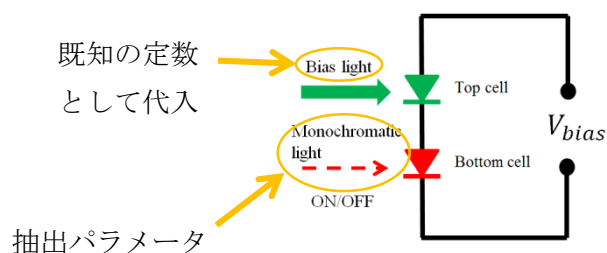


図 4-15 既知の定数としての電流と抽出する電流

つまりフィッティングを開始する前にこの値を代入しておかなければならず、しかも正確に設定しなければならない。もしこの値がずれてしまうと抽出するパラメータにも誤差が生じてしまう。この様子に関して図 4-16 を用いて説明する。

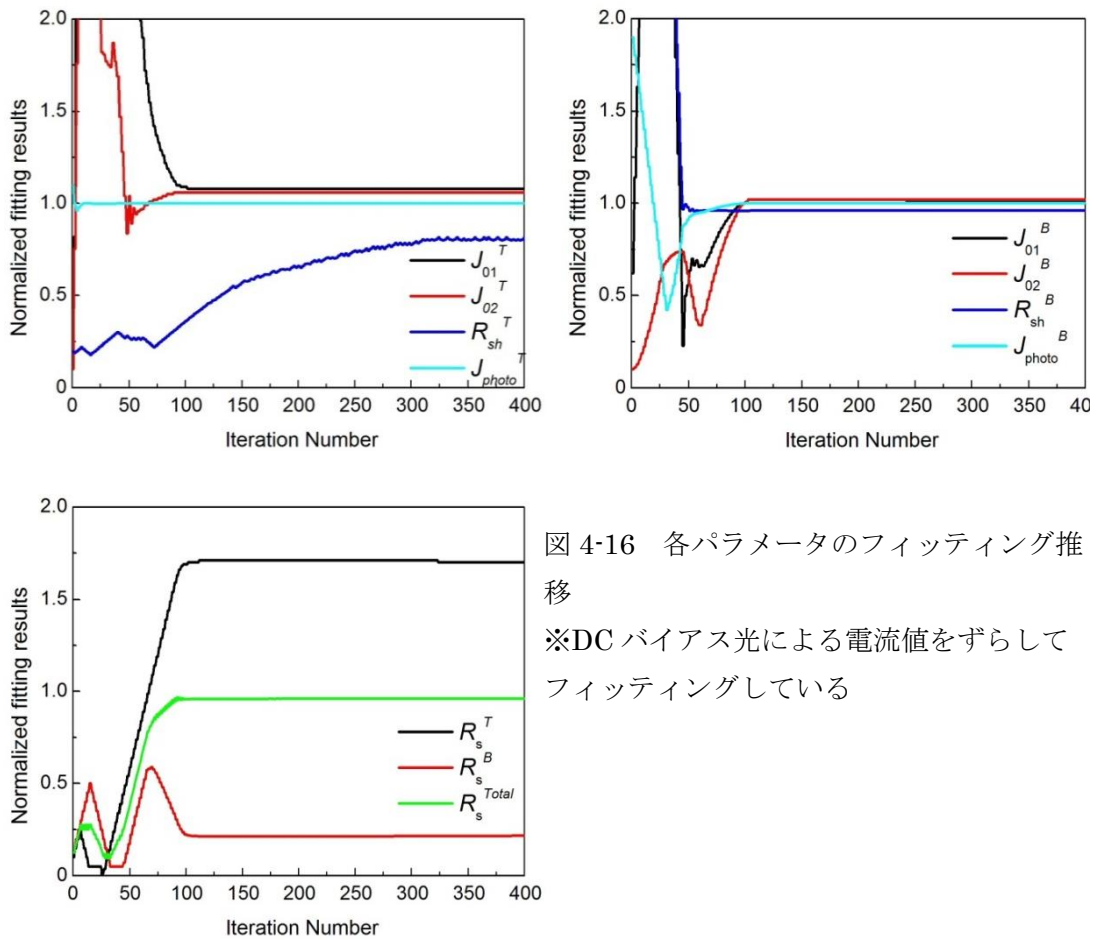


図 4-16 各パラメータのフィッティング推移
 ※DC バイアス光による電流値をずらしてフィッティングしている

図 4-16 は基本的には図 4-8 と同じであり、各サブセルのパラメータも表 4-3 を用いているが、DC バイアス光によって生成される電流値だけ変更してフィッティングをした結果である。変更した値を以下に示す。

図 4-8 トップセル： $3.0 \times 10^{-3} [A/cm^2]$ 、ボトムセル： $2.0 \times 10^{-3} [A/cm^2]$

図 4-16 トップセル： $3.1 \times 10^{-3} [A/cm^2]$ 、ボトムセル： $2.1 \times 10^{-3} [A/cm^2]$

変更した電流値としてはそれぞれ僅か $0.1 \times 10^{-3} [A/cm^2]$ なのだが、図 4-16 の最終的に収束した値をみると真値から誤差が生じており、その誤差はボトムセルで $\pm 5\%$ 、トップセルで $-20\% \sim +10\%$ になる。このように DC バイアス光を使用してフィッティングを行うと、それによって生成される電流値を正確に設定しなければ抽出されるパラメータに誤差が生じてしまう。

- ② 4-3-1 項でも示したが $In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ga_{0.99}In_{0.01}As$ タンデムセルでフィッティングをする時、DC バイアス光によって生成される電流値をトップセル： $1.5 \times 10^{-9} [A/cm^2]$ 、ボトムセル： $1.5 \times 10^{-9} [A/cm^2]$ 、更に AC バイアス光（モノクロ光）の電流値も $1.0 \times$

$10^{-9}[A/cm^2]$ であり、両方とも nA オーダーとなり実際とは大きく異なる値になってしまう。仮に $10^{-5}[A/cm^2]$ オーダーの電流値でフィッティングをしてみてもパラメータが収束せず、発散してしまう（図 4-18 に示す）。 $In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ge$ 、 $Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge$ タンデムセルでは実際に測定可能なオーダーでフィッティングができ、 $In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ga_{0.99}In_{0.01}As$ タンデムセルでは実際とは大きく異なる値になってしまう原因は、各サブセルの電気パラメータに関係すると考えられる。これについて考える前に、DC バイアス光により生成される電流は任意に決めることができるのかを考える。答えは No であり、DC バイアス光の強度をうまく調節しておかなければパラメータ抽出はできない。表 4-1~5 に DC バイアス光による電流が記述されているが、それぞれ小さい値に設定されている。通常 SR-V データを取得する際、2 接合でボトムセルの特性を調べなければトップセルに対しては光強度の大きい DC バイアス光を照射しながら実験を行う。その時に生成される電流は、表 4-1~5 で示されているような小さい値ではなく、より大きい値となる。では何故そのような値にせず、小さい電流値で設定されているのか。DC バイアス光強度を大きくするという事は、照射されているサブセルは通電状態になるため、等価回路図で書くと図 4-17 のようになる。これはボトムセルの特性を調べる際の測定条件となる。(a)はまだ DC バイアス光を照射していないが、(b)で高強度の DC バイアス光を照射すると電流が生成され、その電流がトップセルのダイオード・並列抵抗部分に流れこむ、この状態が通電状態であり、等価的に(c)のようなただの回路上の線のようにになってしまう。これでは取得した SR-V データは実際は 2 接合なのだが、単接合の特性として認識されてしまう。このままような状態で得られた SR-V データを用いてフィッティングを行っても、ボトムセルの SR-V データにトップセルの情報が全く含まれていないため（開放電圧による電圧シフトだけは含まれている）、パラメータが収束せずに発散してしまう。そこで、意図的に DC バイアス光の強度を小さくして生成される電流値を小さくしてやれば、図 4-17(c)のように完全な回路線にはならなくなるため、フィッティングが可能となる。

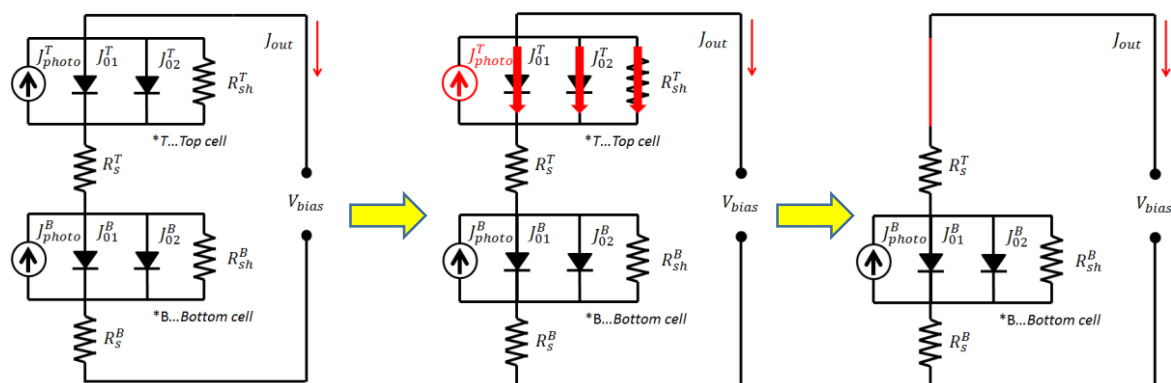
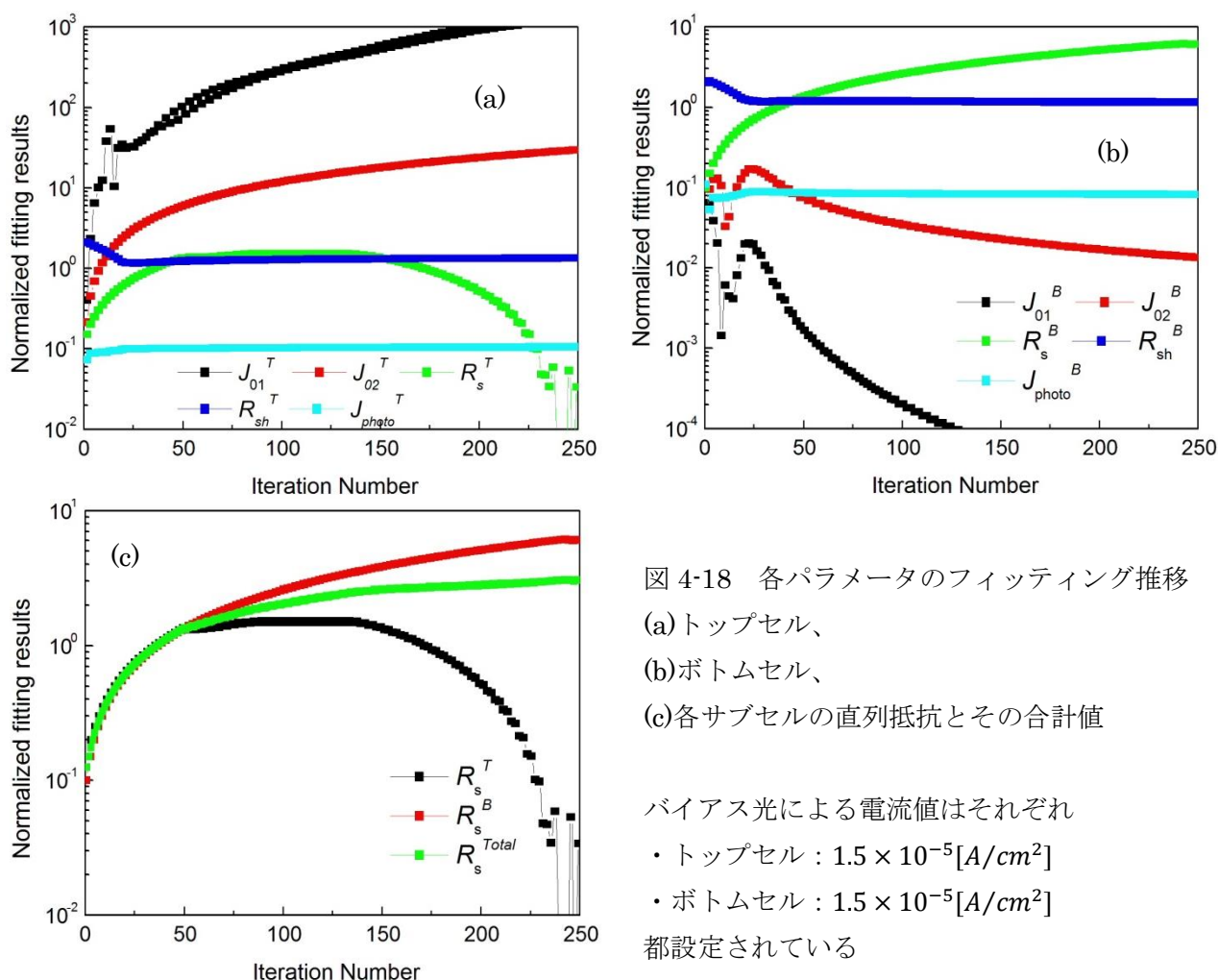


図 4-17 DC バイアス光の強度を大きくしていったときの等価回路図の変化

以上より、DC バイアス光の強度を大きくしすぎるとフィッティングがうまくいかなく

なってしまうので、できる限り小さくする必要があるということが分かった。そこで次にどれだけ小さくしなければいけないかという問題になるが、これはサブセルの電気特性に依存する。今回フィッティングに成功した $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ 、 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデムセルの組み合わせはどちらも Ge を含んでおり、 Ge の電気パラメータは $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$ 、 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ と比較してもシャント抵抗などが非常に悪いことは表 4-1~5 を見れば分かる。このため多少の電流が流れても SR-V データに各サブセルの情報が含まれることになる。それに対して $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルの電気パラメータはシャント抵抗含めて非常に良いため、僅かな電流が流れただけで図 4-17(c) のような状況になってしまう。そのような状況を回避するために、DC バイアス光の強度を小さく抑える必要がある。これが $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ の時、非現実的な値に設定しなければいけない原因だと考えられる。



以上、①・②の問題点について説明をしてきたが、これらを解決するために、「DC バイアス光なしでの SR-V データでフィッティングを行う」という手法を用いる。すなわち、3-3-4 項で説明した手法で得られる SR-V データに対してフィッティングを行う。この手法で問題点を解決できるかを 4-4 節にて検討する。

4-4 パラメータ抽出 II : バイアス光なしのデータ

4-4-1 パラメータ抽出 I との違い

3-3-4 項で説明をした「バイアス光なしの SR-V データ」は、DC バイアス光を使用していないため既知として設定しておかなければいけない電流値を取り除くことができる（図 3-23 参照）。これで電流値は抽出するパラメータである AC バイアス光のみとなる。その結果、前節で挙げていた問題点①「フィッティングを開始する際、DC バイアス光によって生成される電流をセットしておく必要がある」を解決することができる。問題点②「2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルのパラメータを使用してフィッティングをすると、非現実的な値となってしまう」に関しては、実際にフィッティングをかけて現実的な値になるのかを次節以降で確認して解決に導く。

4-4-2 プログラムコードの検証

前節で行ったように、コーディングしたプログラムがある程度の精度でパラメータを抽出できるかをいくつかの試験で確認をする。その後、実験値の SR-V データへフィッティングをかけてパラメータを抽出していく（次節で示す）。本項では、パラメータ 1 つずつを真値からずらしてフィッティングをかけるということはせず、2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ 、 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ 、 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルの組み合わせで、全てのパラメータを真値からずらしてフィッティングの確認のみを行う。

I. 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池の場合

各パラメータの真値と初期値は以下のようにになっている。

表 4-7 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$J_{02}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$R_s[\Omega\text{cm}^2]$	$R_{sh}[\Omega\text{cm}^2]$	$J_{photo}[\text{A}/\text{cm}^2]$
$\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	3.0×10^{-3}
	初期値	2.2×10^{-19}	1.0×10^{-11}	0.02	2.0×10^5	4.0×10^{-3}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-3}
	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	500	4.0×10^{-3}

※DC バイアス光は使用していない

基本的なダイオードパラメータは表 4-3 と同じであるが、 J_{photo} のみ値が変更されている。表 4-3 では AC バイアス光による電流値は $1.0 \times 10^{-4}[A/cm^2]$ であったが、今回は $1.0 \sim 3.0 \times 10^{-3}[A/cm^2]$ とした。前回よりも電流値を大きくした。表 4-7 のパラメータを使ってフィッティングを行った結果を以下に示す。図 4-19 より、前節の時と同様、非常に精度よくパラメータ抽出ができていることが分かる。

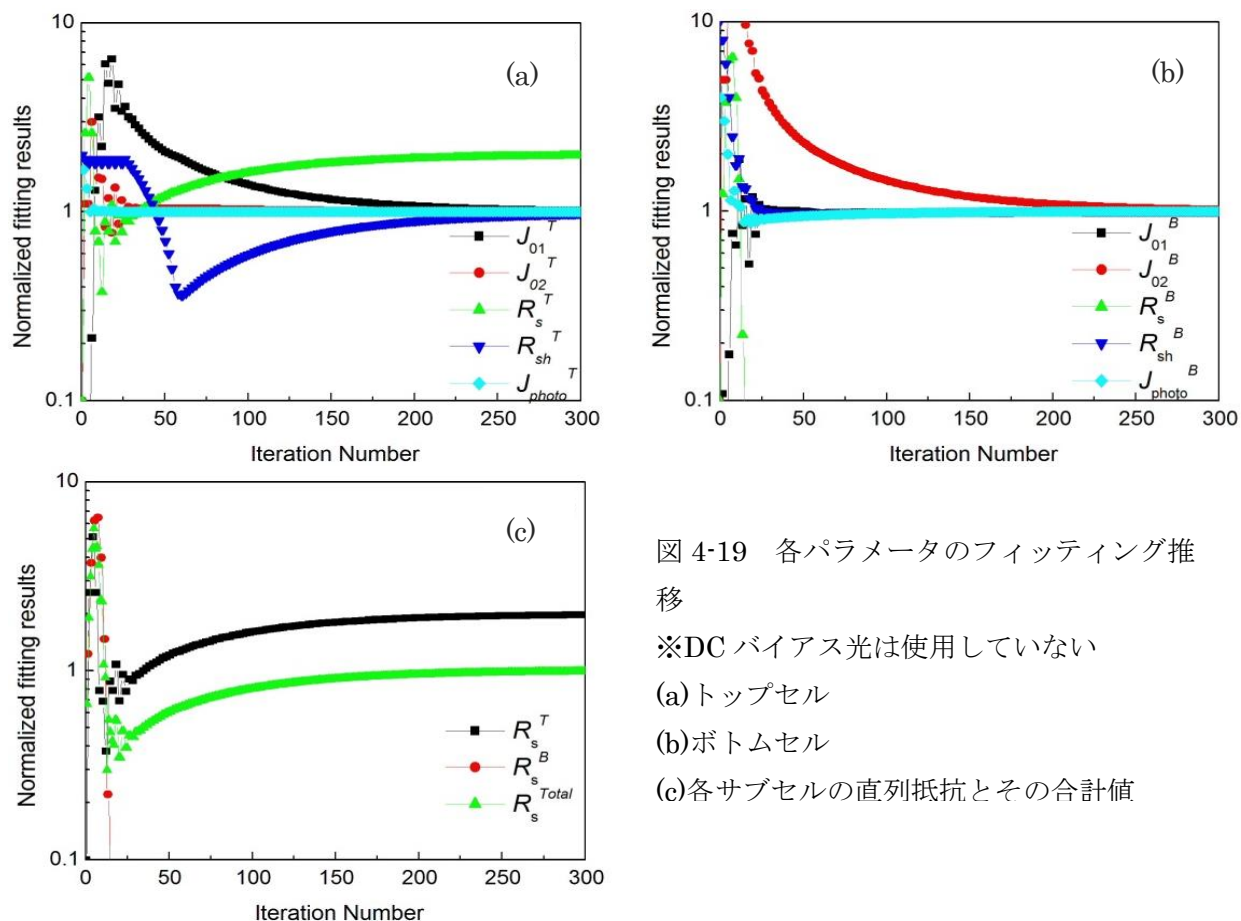


図 4-19 各パラメータのフィッティング推移

※DC バイアス光は使用していない

(a) トップセル

(b) ボトムセル

(c) 各サブセルの直列抵抗とその合計値

II. 2 接合 $In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ge$ タンデム太陽電池の場合

各パラメータの真値と初期値は以下のようにになっている。

表 4-8 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
$In_{0.99}Ga_{0.01}P$	真値	1.5×10^{-26}	4.2×10^{-14}	0.2	1.0×10^5	3.0×10^{-3}
	初期値	1.5×10^{-27}	4.2×10^{-15}	0.02	2.0×10^5	3.0×10^{-3}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	3.0×10^{-3}
	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	500	5.0×10^{-3}

※DC バイアス光は使用していない

基本的なダイオードパラメータは表 4-4 と同じであるが、 J_{photo} のみ値が変更されている。表 4-4 では AC バイアス光による電流値は $1.0 \times 10^{-4} [A/cm^2]$ であったが、今回は $3.0 \times 10^{-3} [A/cm^2]$ とした。この組み合わせでも前回よりも電流値を大きくした。表 4-8 のパラメータを使ってフィッティングを行った結果を以下に示す。図 4-20 より、こちらも前節の時と同様、パラメータ抽出に成功していることが分かる。

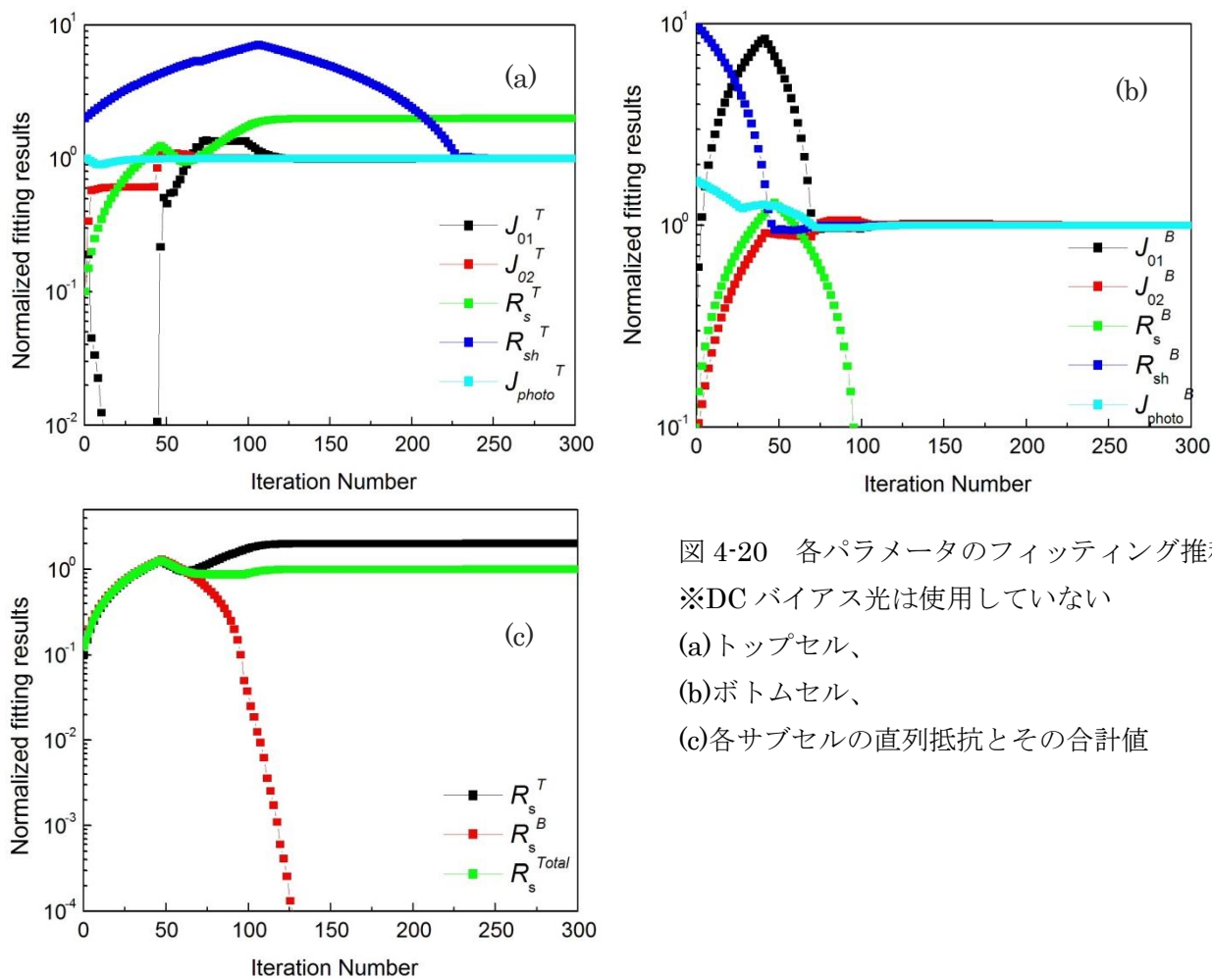


図 4-20 各パラメータのフィッティング推移
 ※DC バイアス光は使用していない
 (a)トップセル、
 (b)ボトムセル、
 (c)各サブセルの直列抵抗とその合計値

III. 2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデム太陽電池の場合

各パラメータの真値と初期値は以下のようになっている。

表 4-9 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$J_{02}[\text{A}/\text{cm}^2]$	$R_s[\Omega\text{cm}^2]$	$R_{sh}[\Omega\text{cm}^2]$	$J_{photo}[\text{A}/\text{cm}^2]$
$\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}$	真値	1.5×10^{-26}	4.2×10^{-14}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-5}
	初期値	1.5×10^{-27}	4.2×10^{-15}	0.02	2.0×10^5	1.5×10^{-5}
$\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	1.0×10^{-5}
	初期値	2.2×10^{-19}	1.0×10^{-11}	0.02	2.0×10^5	1.5×10^{-5}

※DC バイアス光は使用していない

基本的なダイオードパラメータは表 4-5 と同じであるが、 J_{photo} のみ値が変更されている。表 4-5 では AC バイアス光による電流値は $1.0 \times 10^{-9}[\text{A}/\text{cm}^2]$ であったが、今回は $3.0 \times 10^{-3}[\text{A}/\text{cm}^2]$ とした。この組み合わせが前節で問題となっていたものである。nA オーダーではなく、mA のオーダーまで変えてフィッティングを試みる。表 4-9 のパラメータを使ってフィッティングを行った結果を以下に示す。図 4-21 より、収束値である「1」へ全てのパラメータが向かっていることが分かる。また図 4-10 では大きく振動していたパラメータもそれほど大きく振動することがなくなった。この結果より、前節で挙げた問題点②「2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデム太陽電池のパラメータを使用してフィッティングをすると、非現実的な値になってしまう」を解決することができたと言える。

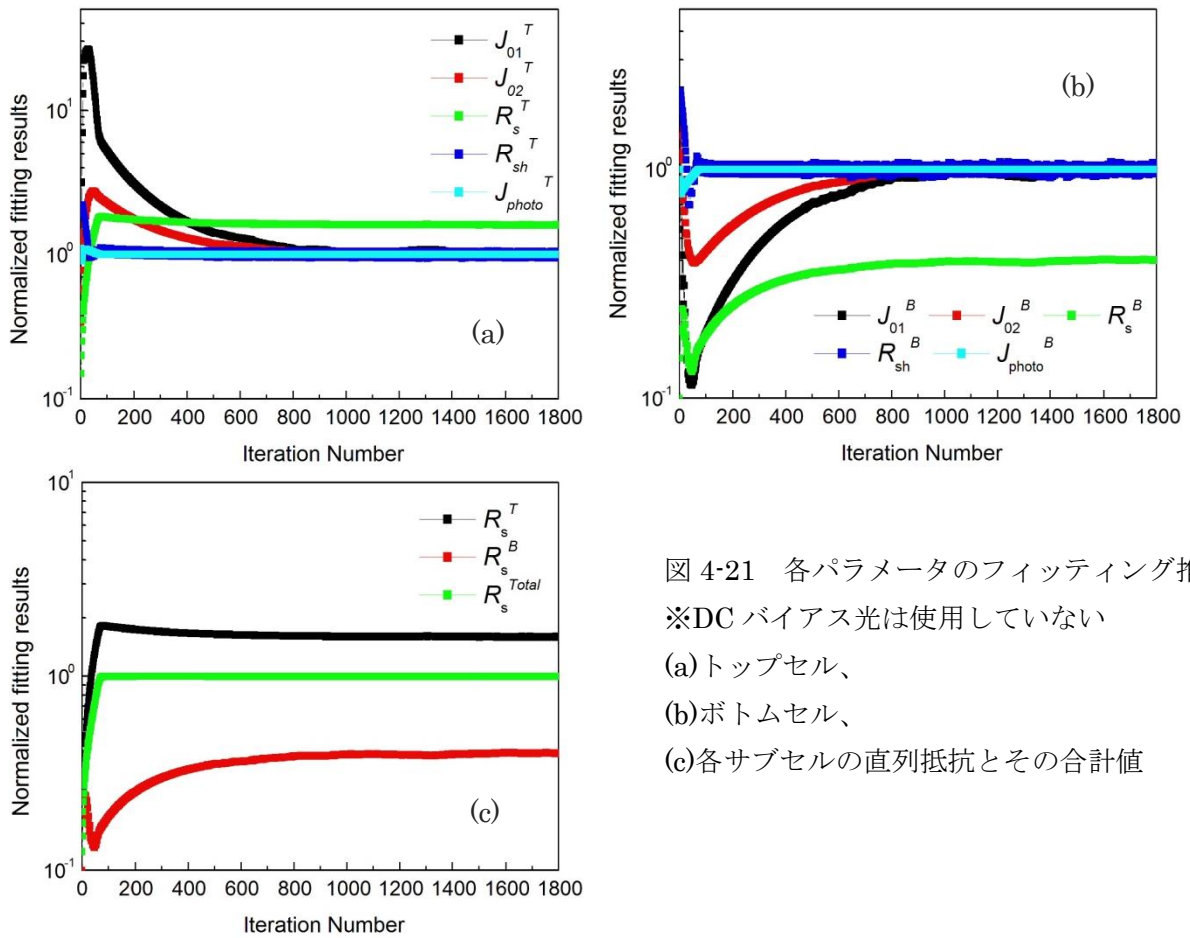


図 4-21 各パラメータのフィッティング推移
 ※DC バイアス光は使用していない
 (a) トップセル、
 (b) ボトムセル、
 (c) 各サブセルの直列抵抗とその合計値

4-4-3 実デバイスの評価と解析^[7]

ここでは実験で得られた SR-V データに対してフィッティングをかけて、パラメータの抽出を行う。フィッティングをかけるものとして、2 接合 Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge タンデムセルを使用する。これは 3-3-3 項で示したセルと同じである。また LED カラーバイアス光は、3-3-4 項で示した波長を使用し、フィッティングに使用する SR-V データは図 3-24 である。

以下に、図 3-24 に対してフィッティングをして得られた各パラメータと収束した SR-V のシミュレーショングラフを示す。

表 4-10 各サブセルのパラメータ初期値と収束値

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	初期値	2.2×10^{-19}	1.0×10^{-11}	0.02	2.0×10^5	2.0×10^{-3}
	収束値	6.28×10^{-18}	9.22×10^{-11}	0.42	1.0×10^5	2.0×10^{-3}
Ge	初期値	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	300	4.0×10^{-3}
	収束値	2.22×10^{-6}	4.39×10^{-5}	4.41×10^{-8}	194	7.2×10^{-3}

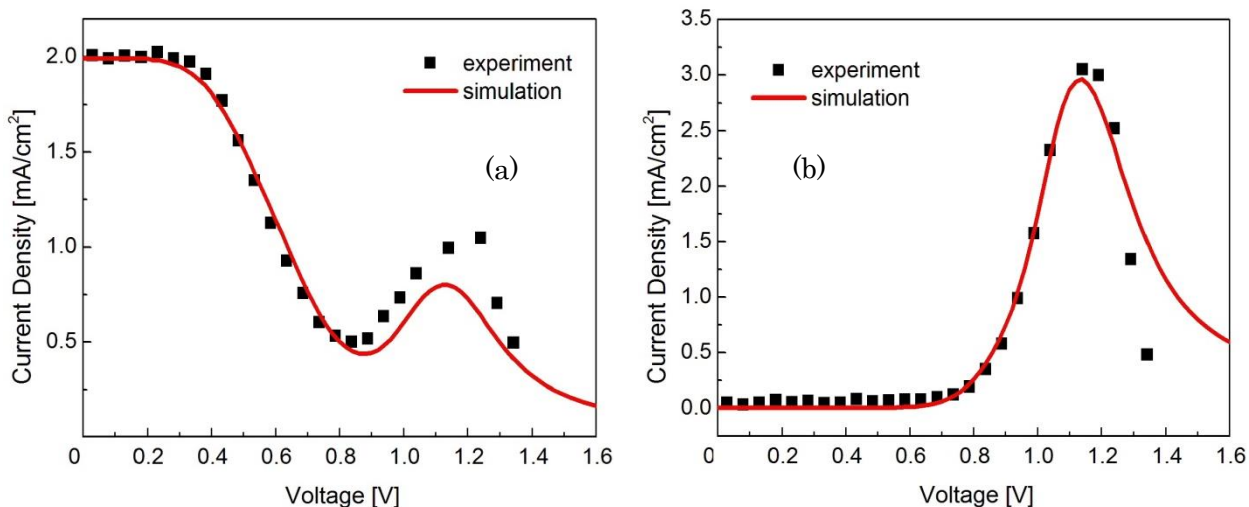


図 4-22 フィッティング後のシミュレーション値と実験値の比較
(a)ボトムセル、(b)ミドルセル

フィッティングによって得られたパラメータを用いて、暗電流特性と光照射時の電流－電圧特性が再現できるかを試みる。光源は 430nm の LED カラーバイアス光を $10\text{mW}/\text{cm}^2$ の強度で照射した。以下がそれらの結果である。

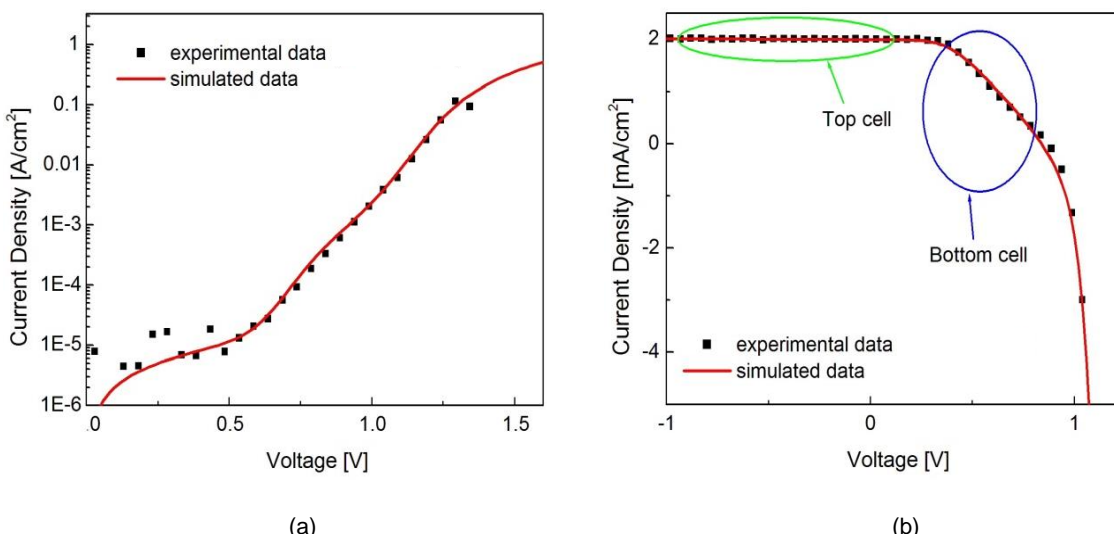


図 4-23 シミュレーション値と実験値との比較
(a)暗電流特性、(b)光照射時の電流－電圧特性

暗電流特性も非常によい精度で再現されているのが分かる。また 430nm の光源であれば、ほぼトップセルで吸収されボトムセルまで届かないと予想されるのでボトムセルは暗状態となる。つまりトップセルとボトムセルで電流律速の変化が起こる。その 2 つの領域が実

験データとよく合っていることから、それぞれのパラメータがよく一致していることが分かる。

最後に光照射時の電流－電圧特性の平方二乗和を計算したところ、 $\sum(J_{measure} - J_{fit})^2 \sim 4.0 \times 10^{-7}$ となった。これは前節の「バイアス光ありの SR-V データ」より抽出したパラメータによる平方二乗和よりも小さくなっている。つまり、より誤差を抑えながらパラメータを抽出することが可能になったと言える。

ここで、表 4-10 の抽出したパラメータがセル特性としての良し悪しを物性パラメータから求められた値と、他のセルで得られた値とを用いて比較検討する。先ず拡散係数 J_{01} と非発光再結合係数 J_{02} は物性パラメータから見積もる。この計算データは付録 1 に示す。直列抵抗・並列抵抗に関しては、スペクトロラボ社が作製した 3 接合タンデムセルを参考にす。このセルは集光時に変換効率が 40%を超える性能を持つ。抽出したパラメータと比較するパラメータをまとめたものを表 4-11 に示す。

表 4-11 各サブセルの抽出したパラメータと参考パラメータ

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	収束値	6.28×10^{-18}	9.22×10^{-11}	0.42	1.0×10^5
	参考値	1.16×10^{-18}	1.85×10^{-11}	~0.2	$> 1.0 \times 10^4$
Ge	収束値	2.22×10^{-6}	4.39×10^{-5}	—	194
	参考値	7.72×10^{-7}	7.12×10^{-6}	—	$> 1.0 \times 10^3$

表 4-11 を見ると、全てのパラメータで改善が必要なことが分かる。特に Ge ボトムセルの並列抵抗は顕著で、より高品質にすることが要求される。また直列抵抗に関しても大きく離れており、集光動作を考える多接合タンデムセルの場合であれば更なる改善が必要である。このように、抽出したパラメータを性能の良い多接合セルと比較をすることで、どのサブセルのどの部分を改善すべきなのかが明瞭になるため、セル製作にフィードバックすることができる。

4-4-4 パラメータ誤差評価²⁾

前項までで 2 接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気パラメータを抽出できることを示したが、それら抽出されたパラメータの精度がどの程度なのかを本項で評価する。

非線形最小二乗法は、4-2-1 項でも記述したように残差二乗和、つまり以下の式

$$S(\mathbf{x}^k) = \sum_{i=1}^n w_i [y_i - f_i(\mathbf{x}^k)]^2$$

が最小になるようなパラメータ \mathbf{x}^k を求めるアルゴリズムである。ここで、重み w_i を明らかにして記述すると、

$$S(\mathbf{x}^k) = \sum_{i=1}^n \frac{\sigma_0^2}{\sigma_i^2} [y_i - f_i(\mathbf{x}^k)]^2$$

と表すことができる。これまでは $\sigma_i = \sigma_0$ としてきたので、重み w_i を一律1と設定してきた。ここで、測定値 y_i が真の値である y_i^0 との差分（誤差と同意） ε_i が正規分布（Gauss分布）に従うことを再度述べておく（4-2-1項で述べた最小二乗法の【前提4】より）。このような測定値 y_i に関する規格化した平方和

$$S \equiv \sum_{i=1}^n \frac{1}{\sigma_i^2} [y_i - y_i^0]^2$$

は、自由度 n の χ^2 分布に従う確率変数の実現値となることが証明されている。自由度 n の χ^2 分布の確率密度は

$$P(\chi^2) = P(S) = \frac{1}{2^{n/2} \Gamma(n/2)} S^{n/2-1} \exp\left(-\frac{S}{2}\right)$$

と表すことができる。ただし $\Gamma(p)$ はガンマ関数であり、一般に

$$\Gamma(p+1) = p\Gamma(p)$$

であり、また特に

$$\Gamma(n) = (n-1)!, \quad \Gamma(1) = 1, \quad \Gamma\left(\frac{1}{2}\right) = \sqrt{\pi}$$

である。つまり、残差二乗和を計算して χ^2 分布にあてはめることにより、その残差二乗和 $S(\mathbf{x}^k)$ の値が確率的に「起こりにくい事象」なのか、それとも「起こりにくいとは言えない事象」なのかを判断することができる。これについて、以下の図4-24と4-25を用いて説明する。

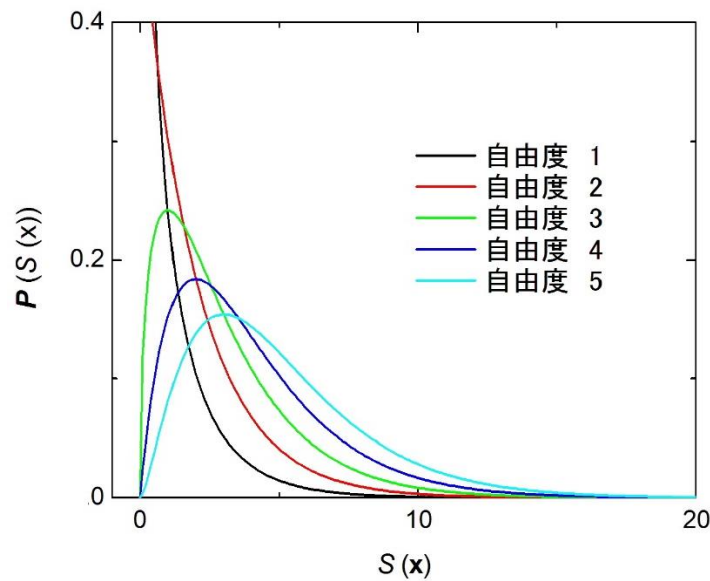


図 4-24 χ^2 分布 自由度 1 から自由度 5 の場合

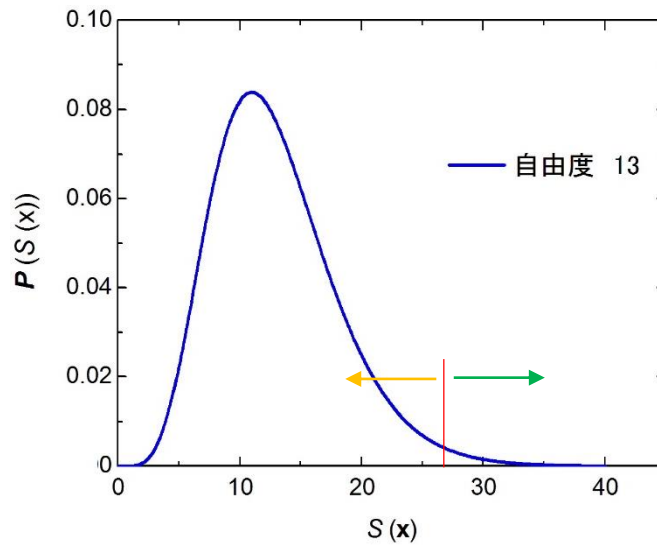


図 4-25 χ^2 分布 自由度 13 の場合

図 4-24 は、自由度が 1 から 5 までの χ^2 分布となる。自由度が大きくなるにつれて右側に崩れるような形状になっている。しかし χ^2 分布は確率密度関数であるため、どのグラフでも $S(\mathbf{x})$ 軸の 0 から無限大まで積分すれば必ず 1 となる。図 4-25 は、自由度 13 における χ^2 分布のグラフである。図中に赤線が引かれているが、この値は $S(\mathbf{x})=27.68$ の点である。こよりも右側（緑色の矢印）を積分すると、確率 0.01 となる。逆に左側（橙色の矢印）を積分すると確率 0.99 となる。つまり χ^2 値が仮に 30 であるとすれば、その起こりうる確率は 100 回のうち 1 回以下の確率でしか起こらない、と同意であるため、この $S(\mathbf{x})=27.68$ の点を基準にとれば「起こりにくい事象」と判断できる。逆に χ^2 値が 15 であれば、確率 0.99 の領域に入るため、 $S(\mathbf{x})=27.68$ を境にすれば「起こりにくい事象とは言えない」と判断できる。このように χ^2 分布を用いて $S(\mathbf{x})$ に関して考察していくことになる。

最小二乗法では 4-2-1 項の【前提 5】で述べたように、モデル関数 $f(\mathbf{x})$ は適切なパラメータ群を選択することで、必ず真の値である y_i^0 を求めることができるとしている。この前提をもとにすると、フィッティングによって求めたパラメータ群を用いて得られる $f(\mathbf{x})$ が真の値である y_i^0 と仮定すれば、その残差二乗和を求めて χ^2 分布にあてはめたときに、その残差二乗和が確率的に「起こりにくいとは言いきれない事象」でなければならない。もし確率的に「起こりにくい事象」となった場合は、フィッティングによって得られたパラメータ群を再度計算しなおす必要がある、と判断しなければならない。このように、抽出したパラメータ群によって得られる残差二乗和を χ^2 分布によって評価することを一般的に χ^2 検定と呼んでいる。本論文では、この χ^2 検定を用いて抽出したパラメータの精度を見積もることにする。

χ^2 検定を行う際、有意水準 α というものを決めなければならない。これは計算した $S(\mathbf{x})$ が「起こりにくい事象」なのかどうかを決める基準のことであり、図 4-25 で言えば $S(\mathbf{x})=27.68$ に赤線を立てたが、これに対応する。このことを、有意水準 α を 0.01 にする、という。

有意水準 α の値は、あるポイントを基準にした χ^2 分布の右側を積分した際に得られる確率値である。つまり、この値が小さいほど確率が小さいことになり、「起こりにくい事象」をより厳しい条件で排除することになる。通例ではこの有意水準 α を 0.01、もしくは 0.05 のどちらかにして χ^2 検定が行われる。今回のパラメータ精度の検証では、0.01 を採用して検定を行う。また検定方法は片側検定で行う。この検定方法は単純で、あるパラメータ群で得られた残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ の値が、図 4-25 に示した $S(\mathbf{x}) = 27.68$ よりも右側にあるのか、それとも左側にあるのか、を決める。もし右側にあれば、再度フィッティングをし直す必要がある。もし左側にあれば、抽出したパラメータ群が間違いとは言いきれないので、採用することとする。つまり誤差範囲の決定の仕方としては、抽出したパラメータ値を中心に上下で大きく振り、その時の残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ を計算してその値が有意水準 $\alpha = 0.01$ となる $S(\mathbf{x})$ と比較して大きければ、有意水準 $\alpha = 0.01$ を基準にして「起こりにくい事象」と判断できるため、そのパラメータ値を排除する。逆に、有意水準 $\alpha = 0.01$ となる $S(\mathbf{x})$ よりも小さければ、有意水準 $\alpha = 0.01$ を基準にして「起こりにくいとは言いきれない事象」と判断できるので、そのパラメータ値は誤差範囲の一部として考える。このようにして各パラメータの誤差範囲を決定する。有意水準 $\alpha = 0.01$ を満たす $S(\mathbf{x})$ の値は、自由度の大きさによって異なる。自由度と確率に対してとる χ^2 値、すなわち $S(\mathbf{x})$ の値がどのようになるのかを付録 2 に示しておく。

この χ^2 検定法が今回のフィッティングに対して有効であるかを検討するために、実験値に対して行うのではなく、最初は 4-3-1 項や 4-4-2 項で示したように予め真値が分かっているシミュレーションデータに対して適用し、その有効性を示す。有効性を示すことができた後に、実験データから抽出されたパラメータに対して適用し、誤差範囲を決定する。

実験データに適用することも考えて、DC バイアス光なしでフィッティングを行った 4-4-2 項を参考にする。4-4-3 項で抽出をしたセル構造は 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池であったので、これと同じ構造のパラメータである表 4-7 を参考にして計算を実行する。まず、Ge ボトムセルの拡散係数 J_{01}^b 以外は全て真値として、 J_{01}^b だけを上下に大きく振った時に残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ がどのような変化をするか見てみる。その結果を示したのが、図 4-26 である。このシミュレーションでは、測定ポイントが 150・パラメータ数が 10 のため、 χ^2 分布では自由度 140 に相当する。自由度 140 の時、有意水準 $\alpha = 0.01$ となる値を付録 2 から読み取ると $S(\mathbf{x}) = 181.8403$ であることが分かる。図 4-26 にはその $S(\mathbf{x}) = 181.8403$ も同時にプロットしている。図 4-26 で真値と書かれているポイントは、拡散係数 J_{01}^b の真値、つまり表 4-7 より $J_{01}^b = 9.6 \times 10^{-6}$ を示しており、このポイントの時に残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ が最小になっていることが $S(\mathbf{x})$ を対数目盛にした右図を見ると明確にわかる。つまり図 4-26 は、拡散係数 J_{01}^b が真の値からずれることにより、残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ が徐々に増加する、という傾向を表したグラフとなっている。そしてこのグラフより拡散係数 J_{01}^b の誤差を求める。この求め方に関しては図 4-27 を用いて考える。有意水準 α に関して述べた際に記述をしたが、有意水準 α となる残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ よりも大きい残差となるということは、確率的に 1%以下でしか起こらないということになるので、「起こりにくい事象」としてそのパラメータ範囲

を除くとした。図 4-27 で言えば、赤線で示した有意水準 $\alpha = 0.01$ よりも大きい範囲、つまり青線よりも左側の範囲は「起こりにくい事象」としてパラメータの誤差範囲から除くことにする。

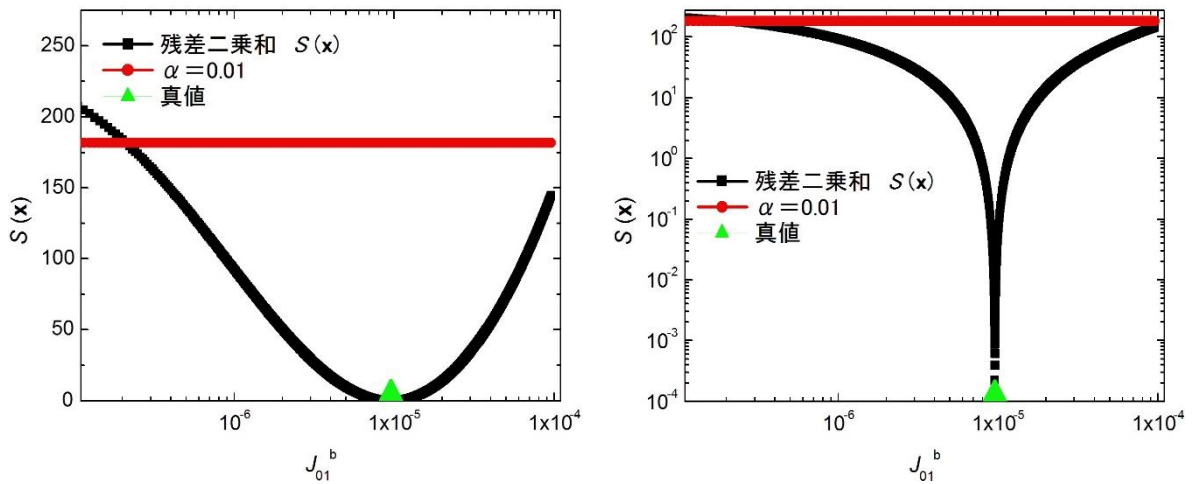


図 4-26 拡散係数 J_{01}^b と残差二乗和 $S(x)$ との関係

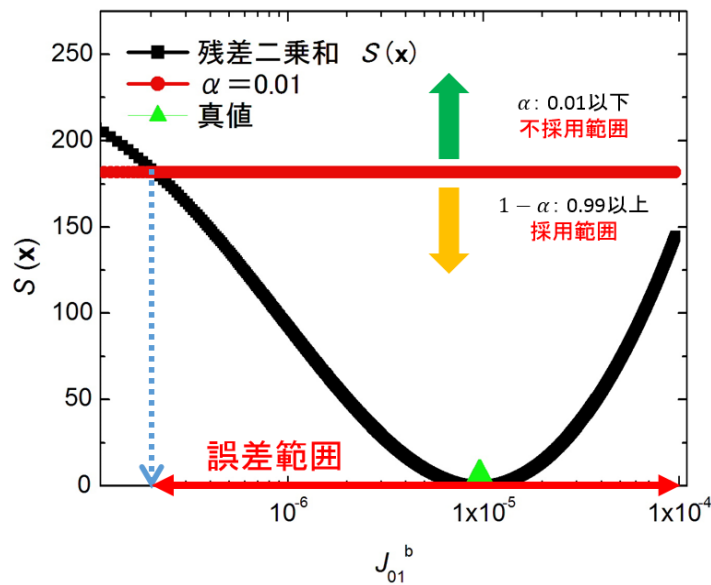


図 4-27 拡散係数 J_{01}^b の誤差範囲

このような方法で、各サブセルのそれぞれのパラメータの誤差範囲を決定していくこととする。ここで注意しておくことは、 χ^2 検定によりどうしても無視をしてしまう範囲が出る。その範囲に拡散係数 J_{01}^b が含まれる確率は有意水準 α を 0.01に設定しているの、1%以下という僅かな確率だが、真の値を排除する確率は存在する。このように、本当は正しいはずのパラメータ範囲を誤って排除してしまうことを第一種の誤りと呼ぶ。この点に関して今後

更なる検討が必要と思われる。

これまでは、Ge ボトムセルの拡散係数 J_{01}^b を上下に大きく振って残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ の振る舞いを見てきた。次は同じセル構造だが、初期値として設定するパラメータとして Ge ボトムセルの拡散係数 J_{01}^b 、非発光再結合係数 J_{02}^b 、直列抵抗 R_s^b 、並列抵抗 R_{sh}^b を真値からずらして誤差範囲を計算した時に、その範囲内に真値が含まれているかを確認する。誤差範囲内に真値が含まれていれば、この χ^2 検定の有用性を示すことができる。真値に対してずらした幅はそれぞれのパラメータ 20%である。具体的な値を表 4-13 に示す。

表 4-13 各パラメータの真値と初期値との違い

		$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga _{0.99} In _{0.01} As	真値	2.2×10^{-18}	1.0×10^{-10}	0.2	1.0×10^5	3.0×10^{-3}
Ge	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50	1.0×10^{-3}
	初期値	11.52×10^{-6}	6.32×10^{-5}	0.16	40	1.0×10^{-3}

表 4-13 のパラメータを用いて、図 4-26・27 のような「パラメータ vs 残差二乗和」のグラフを書くと図 4-28 のようになる。図 4-28 で拡散係数 J_{01}^b と並列抵抗 R_{sh}^b に関しては、誤差範囲として上限と下限を決定することができる。しかし非発光再結合係数 J_{02}^b と直列抵抗 R_s^b に関しては、誤差範囲の上限を決めることは可能だが、下限を決めることができない。上限・下限を決定できる J_{01}^b と R_{sh}^b はグラフを見てもわかるように、パラメータを僅かに動かすだけで残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ が大きく変化する。これはフィッティングをする際に、残差二乗和に大きく影響を与えることを意味している。逆に上限のみしか決定できない J_{02}^b と R_s^b は、値を小さくしていくと残差二乗和が殆ど変化しないため、ある程度値を小さくしてしまうと「フィッティングに必要なパラメータでなくなる」ということを意味している。つまり意味のあるパラメータとするには、残差二乗和がほぼ変化をしなくなる範囲までとすればよいので、残差二乗和のグラフの微分係数がほぼ 0 となる箇所まで下限を決定しておけばよいと考えられる。図 4-28 に青線で示しているのが、表 4-13 にも書かれているそれぞれのパラメータの真値である。 J_{01}^b と R_{sh}^b に関しては上限・下限が決められているが、その誤差範囲の中に真値が入っていることが分かる。また J_{02}^b と R_s^b に関しても、上限を超えることはないので下限値を適切に設定しさえすれば、問題ないといえる。

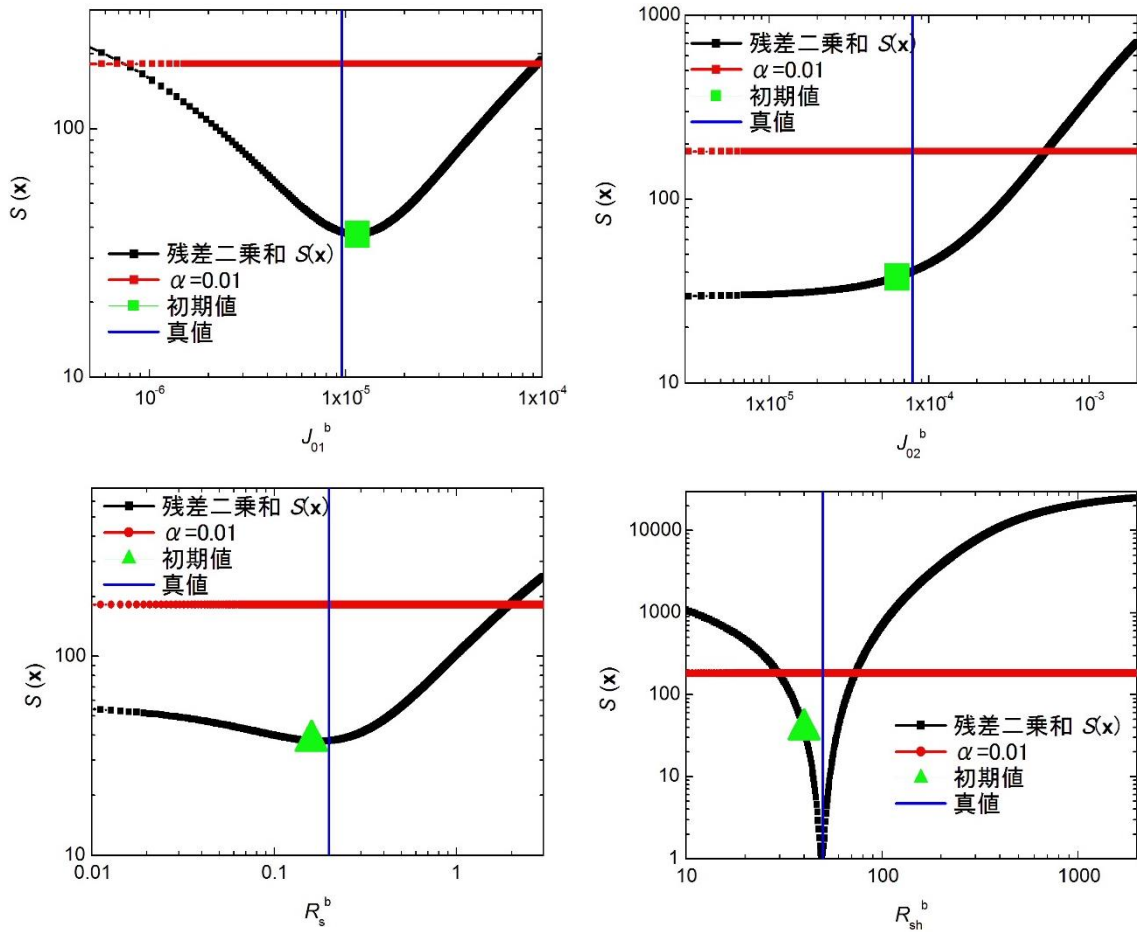


図 4-28 Ge ボトムセルの各パラメータと残差二乗和 $S(\boldsymbol{x})$ との関係

図 4-28 から各パラメータの上限・下限値を決め、誤差範囲を決定することができた。更に踏み込んで、この誤差範囲の中からどのような組み合わせで残差二乗和 $S(\boldsymbol{x})$ が最も小さくなるのかを検討することで、より真値に近づく可能性がある。そこで最後に、各パラメータの誤差範囲から真値の組み合わせが抽出できるかを検討する。

この検証シミュレーションでも 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池を使用し、真値は表 4-7 とする。図 4-26~28 のようにパラメータを上下に大きく振るものは、ボトムセルの J_{01}^b , J_{02}^b , R_s^b , R_{sh}^b の 4 種類とする。本来は、 χ^2 検定により決定された各パラメータの誤差範囲を使用しなければならないのだが、ここでは任意に決定されたパラメータ誤差範囲を使用する。それぞれの誤差範囲を表 4-14 に示す。

表 4-14 各パラメータの誤差範囲

	誤差	$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$
Ge	最大	9.6×10^{-5}	7.9×10^{-4}	2	500
	真値	9.6×10^{-6}	7.9×10^{-5}	0.2	50
	最小	9.6×10^{-7}	7.9×10^{-6}	0.02	5

誤差の範囲として、最大値では真値の 1 桁上、最小値は真値の 1 桁下、と設定し、全体として 2 桁というある程度広い範囲を持たせている。これらの範囲にあるパラメータで、最も残差二乗和が小さくなる組み合わせを探索していく。最適な組み合わせを探索するうえで重要な点がある。それは、誤差の最小値から最大値までをどのように分割するかということである。パラメータは実数であるので、最小値から最大値までを際限なく細かく分割することができる。細かく分割すれば、最適な組み合わせを非常に精度よく決定することができるが、細かく分割すればするほど最適解探索に要する時間が増大し、パラメータ抽出に時間がかかりすぎてしまう。例えば各パラメータに対して、誤差範囲内を 100 個で分割すると、表 4-14 のようにパラメータが 4 個であったとしても 100^4 個の組み合わせを全て探索し、残差二乗和を比較しなければならない。2 接合タンデムセルではパラメータが 10 個あるので、これでは探索だけで時間がかかりすぎてしまう。そこで、表 4-14 のような状況下で分割数を変えたとき、残差二乗和が最も小さくなる組み合わせが真値に対してどの程度ずれているかを検討したものが図 4-29 である。分割数を多くしていけば、各パラメータの精度が良くなることが分かる。特に 5 分割の時、 J_{02}^b と R_s^b は大きくずれていたのだが、10 分割することでほぼ真値を抽出することに成功している。それに対して J_{01}^b と R_{sh}^b は、5 分割の時でも 10% のずれこそあるが、真値からかけ離れた値ではないことが分かる。何故このような傾向になるかを図 4-28 を用いて説明する。図 4-28 でも示したが、 J_{01}^b と R_{sh}^b は誤差範囲の上限と下限を決定することができることから、残差二乗和へ大きな影響を与える。それに対して J_{02}^b と R_s^b は、上限を決めることはできるが、下限を決定することができなかった。これは残差二乗和へ与える影響が小さいことからである。つまり、残差二乗和により大きな影響を与える J_{01}^b と R_{sh}^b の組み合わせが優先的に選択され、影響力の小さい J_{02}^b と R_s^b はその後で考慮されることになる。そのため、このような傾向が得られると考えられる。ともあれ分割数を 10 程度にすれば、誤差範囲内での抽出パラメータの最適解をかなりの精度で探索することができることが分かった。

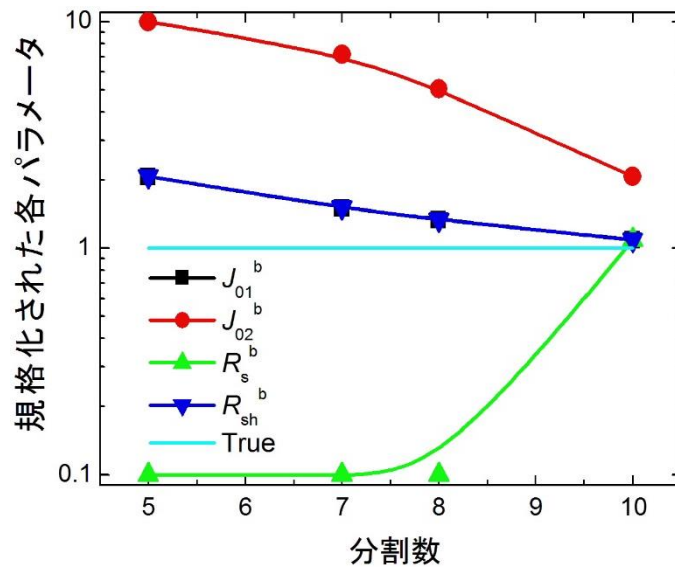


図 4-29 真値に対する探索後の最適解のズレと分割数の関係

これまでの検証結果より、 χ^2 検定を用いて各パラメータの誤差範囲を決定することができることを示した。更に、その誤差範囲の中で最も残差二乗和が小さくなる最適な組み合わせを抽出することができる可能性も示した。よって本項の最後に、この方法論を 4-4-3 項で示した、実験データから抽出された各サブセルのパラメータに対して適用する。ただし、誤差範囲の中から最適な組み合わせを抽出することは行わない。なぜなら、図 4-29 で示したように真値からのエラーを小さくするため、仮に分割数を 10 とした場合、2 接合タンデムセルではパラメータが合計 10 個あるので、 10^{10} 通りもの組み合わせで残差二乗和を比較しなければならない。この計算を行うのは現実的ではなく、むしろ別の方法で最適な組み合わせを探索することが必要とされる。このような理由で、図 4-29 のような方法論は適用しない。この点に関しては今後の課題となる。

図 4-30 が Ge ボトムセルの各パラメータに対して χ^2 検定を適用した結果である。この結果より、 J_{01}^b と R_{sh}^b と J_{photo}^b は誤差範囲の上限・下限を決定できることから残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ に与える影響が大きいことになる。逆に、図 4-28 と同様で J_{02}^b は上限のみしか決定できないことから、残差二乗和 $S(\mathbf{x})$ に与える影響が小さいことが分かり、パラメータの抽出が難しいことを示している。図 4-31 が $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ トップセルの各パラメータに対して χ^2 検定を適用した結果である。この結果より、 J_{01}^t と R_s^t と J_{photo}^t は誤差範囲の上限・下限を決定できるが、 J_{02}^t は下限を、 R_{sh}^t は上限を決めることができない。 R_{sh}^t に関しては、図 4-23(b)でも示した電流—電圧特性から分かるように、トップセルの R_{sh}^t は非常に良好であることが分かる（トップセルに律速されている電圧範囲でほぼ平坦な特性となっている）。つまり、ある程度大きな値として R_{sh}^t を設定しておけば、他のフィッティングに大きな影響を与えないことが分かる。表 4-15 に図 4-30・31 から求められる各パラメータの誤差範囲を示す。

表 4-15 各パラメータの誤差範囲

	誤差	$J_{01}[A/cm^2]$	$J_{02}[A/cm^2]$	$R_s[\Omega cm^2]$	$R_{sh}[\Omega cm^2]$	$J_{photo}[A/cm^2]$
Ga(In)As	最大	1.2×10^{-17}	1.8×10^{-10}	0.45	2.0×10^5	2.1×10^{-3}
	収束値	6.28×10^{-18}	9.22×10^{-11}	0.42	1.0×10^5	2.0×10^{-3}
	最小	3.6×10^{-19}	2.0×10^{-12}	0.065	2.5×10^4	1.9×10^{-3}
Ge	最大	5.5×10^{-5}	1.7×10^{-4}	—	230	8.0×10^{-3}
	収束値	2.22×10^{-6}	4.39×10^{-5}	4.41×10^{-8}	194	7.2×10^{-3}
	最小	6.0×10^{-7}	6.0×10^{-6}	—	180	6.9×10^{-3}

※Ge の直列抵抗 R_s は、Ga(In)As に対してほぼ無視することができるので、誤差範囲を求めることはしなかった。

※ボールド体の数値は、任意に決定された値であることを示している。

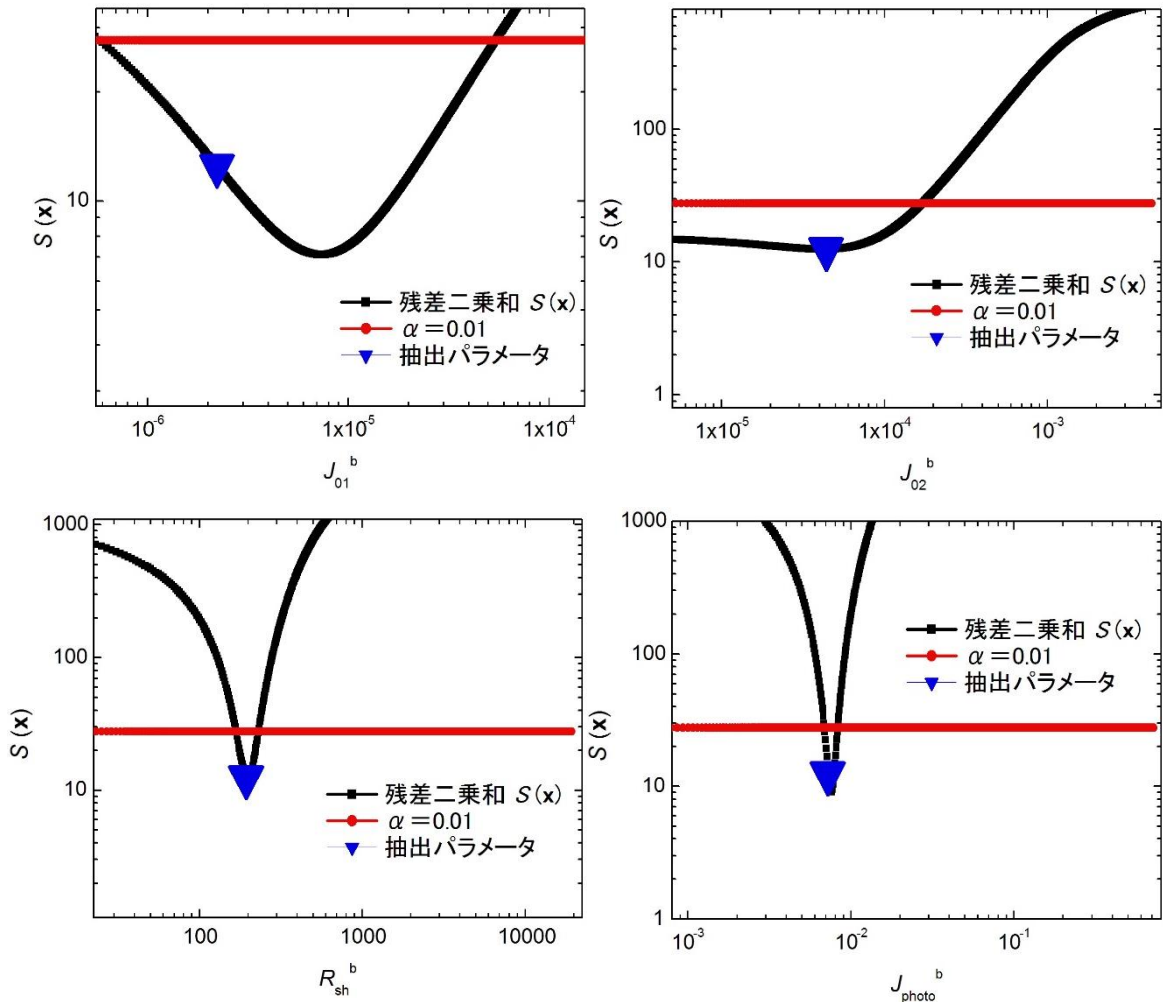


図 4-30 Ge ボトムセルの各パラメータと残差二乗和の関係

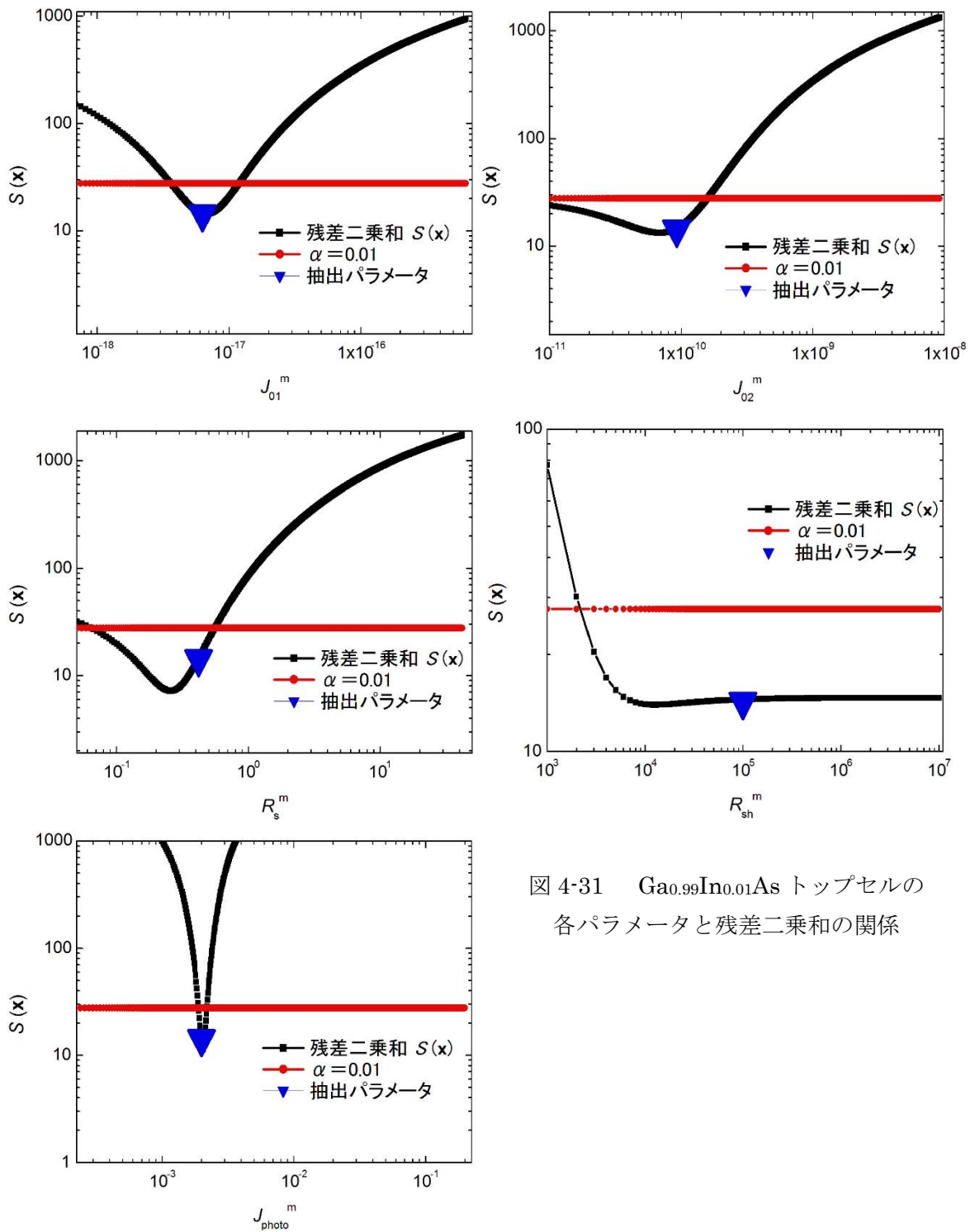


図 4-31 Ga_{0.99}In_{0.01}As トップセルの各パラメータと残差二乗和の関係

表 4-15 より、誤差感度のよいパラメータと悪いパラメータが分かる。誤差感度のよいボトムセルの R_{sh}^b と J_{photo}^b や、トップセルの J_{photo}^t に関しては、誤差範囲が非常に狭いのだが、その他のパラメータは非常に誤差範囲が広がっている。そこでやはり図 4-29 で示したような方法論を適用して、その決まった誤差範囲の中から更に最適な組み合わせを考えていく必要があると思われる。今後は更に検討が必要となってくる。

参考文献

- [1] P. Rabinowitz, Numerical methods for nonlinear algebraic equations, Gordon and Breach science publishers (1970).
- [2] 中川徹・小柳義夫, 最小二乗法による実験データ解析 プログラム SALS, 東京大学出版会 (2007).
- [3] S. Tomah, A. Ogura, M. Ohba, and Y. Okada, Prog. Photovolt: Res. Appl. ; DOI: 10.1002/pip.2392.
- [4] Y. Tsuno, Y. Hishikawa, and K. Kurokawa, Proc. 31st IEEE Photovoltaic Specialists Conf., June 2005, 1476.
- [5] R. Adelhelm and K. Bucher, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, **50** (1998) 185.
- [6] M. Meusel, C. Baur, G. Letay, A.W. Bett, W. Warta, and E. Fernandez, Prog. Photovolt: Res. Appl., **11** (2003) 499.
- [7] A. Ogura, S. Tomah, M. Ohba, and Y. Okada, Jpn. J. Appl. Phys. (submitted).

第5章

多接合タンデム太陽電池内における ルミネッセンスカップリングの効果

第5章 多接合タンデム太陽電池内におけるルミネッセンス

カップリングの効果

5-1 概要

太陽電池は外界から光を吸収するだけでなく、自身で放射した光を吸収してキャリアを生成することもできる。単接合太陽電池でも発光再吸収（フォトンリサイクリング）という現象を利用して変換効率を高めようとする研究が行われている。多接合タンデム太陽電池の場合でも、太陽電池内部ではこのフォトンリサイクリング現象は起きているが、単接合と違い異種半導体が層構造で接続されているため、サブセル1の発光がサブセル2に対して影響を与えるということが起こる。このような現象をフォトンリサイクリングとは区別してルミネッセンスカップリングと呼ぶ。このルミネッセンスカップリング現象が太陽電池の動作特性にどのような影響を及ぼすか、という研究が種々の方法で試みてこられた。本章では、先ずルミネッセンスカップリングについて説明し、その後にこれまで行われてきたルミネッセンスカップリングの評価法について述べ、それらの改善点を指摘する。本論文では、その改善点を踏まえてより厳密にルミネッセンスカップリングの解析・評価を行い、最終的に多接合タンデム太陽電池の電流－電圧特性にどのような影響を及ぼすかについて検討を行った。

5-2 ルミネッセンスカップリング

太陽電池は光を吸収することで価電子帯にある電子を伝導帯へ励起させ電子・正孔対を生成し、それらキャリアを外へ取り出して電気エネルギーとして使用する。しかし励起した電子の中には外部へ取り出されることなく太陽電池内部でエネルギーを失い、また価電子帯へ遷移してしまうものもある。この伝導帯から価電子帯へエネルギーを失って緩和することを再結合過程と呼ぶ。この再結合過程は、発光再結合と非発光再結合に分けられる。結晶の品質が悪い場合に多く存在する格子欠陥は、バンドギャップ中に準位を形成する。またドーピングのために使用した不純物の中には、伝導帯の下端・価電子帯の上端から遠く離れたバンドギャップ中央あたりに深い準位を形成してしまうものもある。このような準位を介して発光を伴わずにエネルギーを失う過程のことを非発光再結合と呼ぶ。それに対して発光再結合は、その名の通り伝導帯から価電子帯へ遷移する際に、その失われるエネルギーに対応した光子（フォトン）を放出する。その放出されたフォトン、放出した材料そのもので再度吸収する過程を発光再吸収（フォトンリサイクリング）と呼ぶ。この現象は単接合太陽電池・多接合タンデム太陽電池の両方で起こり得る。それに対して、本節で説明をするルミネッセンスカップリングは多接合タンデム太陽電池特有の現象となる。このフォトンリサイクリングとルミネッセンスカップリングを以下の図を用いて説明する。

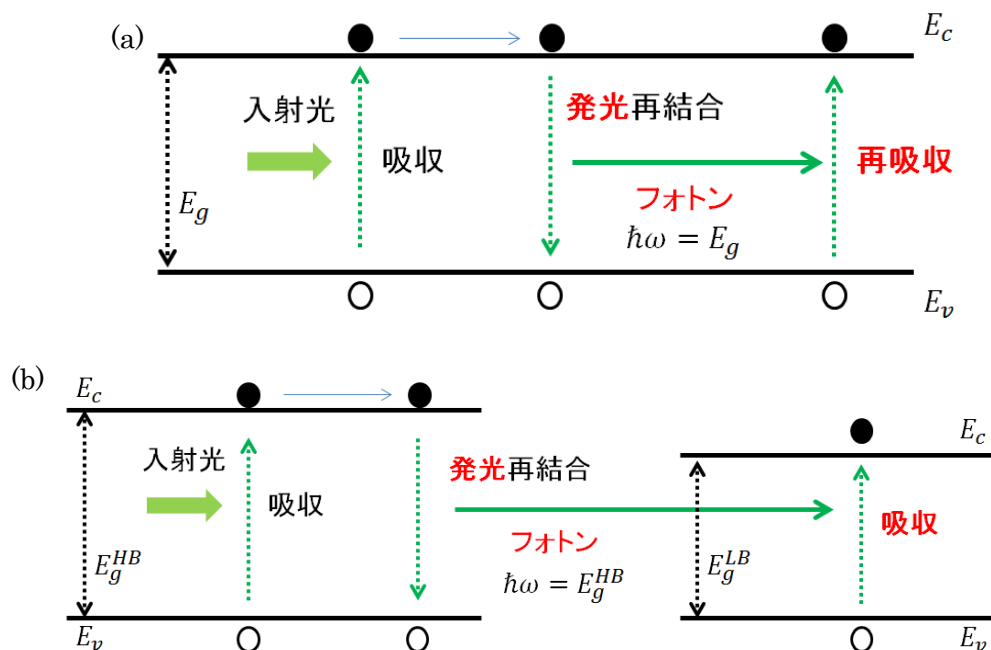


図 5-1 (a)光子リサイクリング、(b)ルミネッセンスカップリング

図 5-1(a)の光子リサイクリングを表しており、外部の光を吸収して一度励起した電子が発光再結合によってバンドギャップに等しいエネルギーを持った光子を放出し、その光子を再吸収する過程となっている。図 5-2(b)はルミネッセンスカップリングを表しているが、光子リサイクリングとの違いとしては、放出した光子をそのサブセル自身で再吸収するのではなく、別のサブセルで吸収されるという点である。また光子を吸収するためにはバンドギャップよりも大きいエネルギーが入射してこなければいけない。多接合タンデム太陽電池は上層から下層に向かってバンドギャップが小さくなっていく構造なので、上層のサブセルから放射された光子が下層のサブセルで吸収される、という過程しか起こらない。この逆の過程の場合、下層で放射された $\hbar\omega = E_g^{LB}$ のエネルギーを持った光子では、 $E_g^{HB} > E_g^{LB}$ の関係より吸収することができない。

実際に太陽電池が光る様子を図 5-2 に示す。太陽電池に対して光を照射せず、順方向電圧を印加してキャリアを太陽電池内部に注入すると、内部で発光再結合によってキャリアが失われ、その失われたエネルギーが放出されて赤く見える。光は等方的に放射されるはずなので、我々の目に届くような上方向だけでなく、下方向にも放射される。この下に向かって放射された光子がルミネッセンスカップリングに寄与をする。また多接合タンデム太陽電池の多くは、太陽光を集光することを想定して設計されている。図 5-3 は屋外に設置されている多接合タンデム太陽電池のモジュールである。このように集光動作をさせると太陽電池内部で生成されるキャリアの量も増加するため、各サブセル内の擬フェルミの開きが大きくなる。擬フェルミの開きが大きくなると発光再結合の量も大きくなるため、ルミネ

ルミネセンスカップリングの効果がより顕著になる。

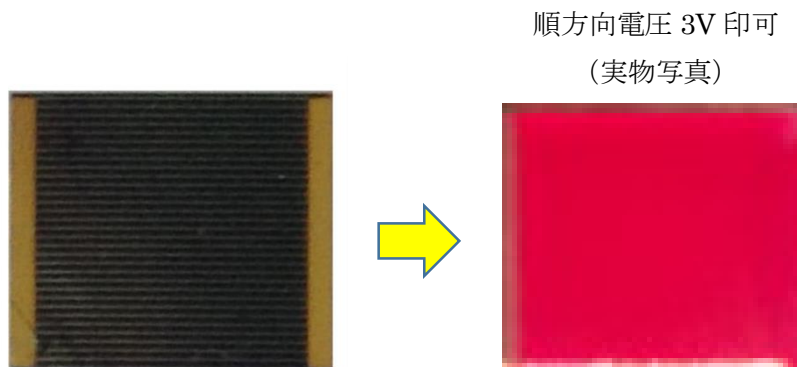


図 5-2

多接合タンデム太陽電池に順方向電圧をかけた時の様子



図 5-3 多接合タンデム太陽電池が実際に使用される様子

5-3 従来のルミネセンスカップリング評価法と課題

本節では、前節で説明をしたルミネセンスカップリング^[4]についてこれまで行われてきた代表的な評価方法について説明をする。更にそれら評価法において改善すべき余地のあることを指摘する。

5-3-1 直流電流－電圧特性 (DC I-V 特性)

2 接合タンデム太陽電池で考えた場合、トップセル (E_g^{HB} セル) にのみカラーバイアス光を照射し、ボトムセル (E_g^{LB} セル) には光を照射しない暗状態であれば、電流律速条件より測定される電流－電圧特性は外部バイアス 0V で出力電流は $0A/cm^2$ になる筈である (シャント抵抗が無限大で、ダイオードの逆方向飽和電流が全くない理想的状況を考えている)。これは、ボトムセルが全く電流を生じていないことによる。この時、トップセルで生じたキ

キャリアは全てトップセル内部の再結合過程によって失われる必要がある。その再結合過程には勿論、非発光によるものもあれば、発光によって失われるものもある。トップセルへのバイアス光強度が小さい時は、非発光による再結合が主となり発光再結合によって失われるキャリアは少ない。ゆえに、バイアス光の強度が小さい時はトップセルから光子は殆ど放射されず、ボトムセルは影響を受けない。しかし、トップセルへのバイアス光強度を大きくしていくと、発光再結合によって失われるキャリアが多くなり、それに応じて放射される光子も多くなる。このトップセルからの光子がボトムセルまで届けば、その光子はボトムセルがキャリアを生成するために十分なエネルギーを有しているため、ボトムセル内部でキャリアが生成される。これはボトムセルに対して外部から光を供給していることと同じなので、電流－電圧特性を測定すると先程の外部バイアス 0V でも出力電流は 0A/cm²ではなくなる。つまり、トップセルへのバイアス光強度変化させたとき、電流－電圧特性に影響が現れる。その様子を図 5-4 に示す。

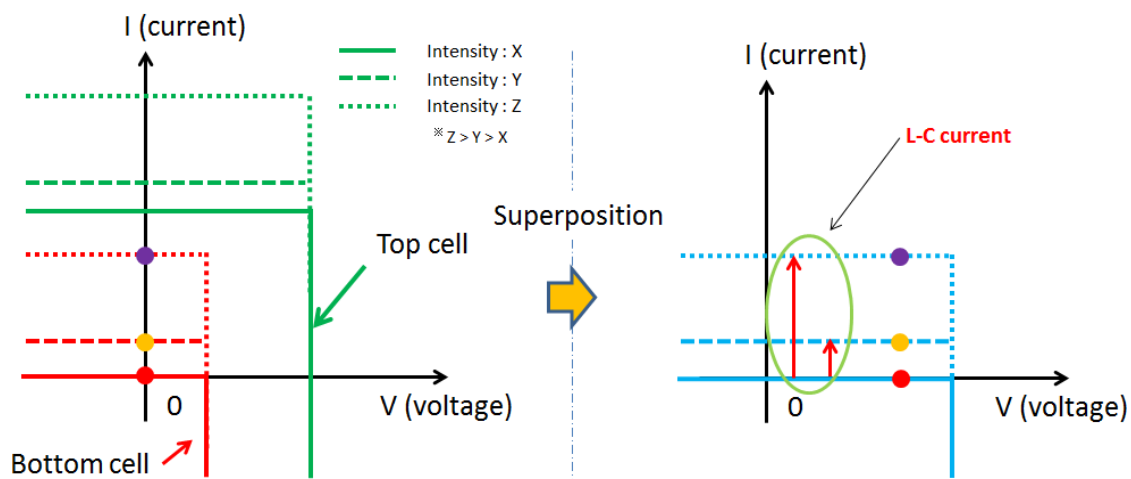


図 5-4 トップセルへのバイアス光強度を変化させたときの電流－電圧特性

左図は各サブセルの電流－電圧特性であり、右図が実際に測定される電流－電圧特性の概念図である。バイアス光強度が小さい時（強度：X）、ルミネッセンスカップリングが起きないため、出力される電流もボトムセルに律速されて 0A/cm²のままである。しかしバイアス光強度を徐々に大きくしていくと（強度 X→Y→Z）、ルミネッセンスカップリングの効果が現れ始め、元々暗状態だったボトムセルが電流を生じることにより、出力される電流－電圧特性に変化が生じているのが分かる。この変化が生じた電流部分をルミネッセンスカップリング電流（L-C Current）と呼ぶ。この変化を見ればサブセル間のルミネッセンスカップリングを評価できる筈である。論文[2]では、以下に示す等価回路モデルを用いてカップリングの解析を行い、実験値と比較している。

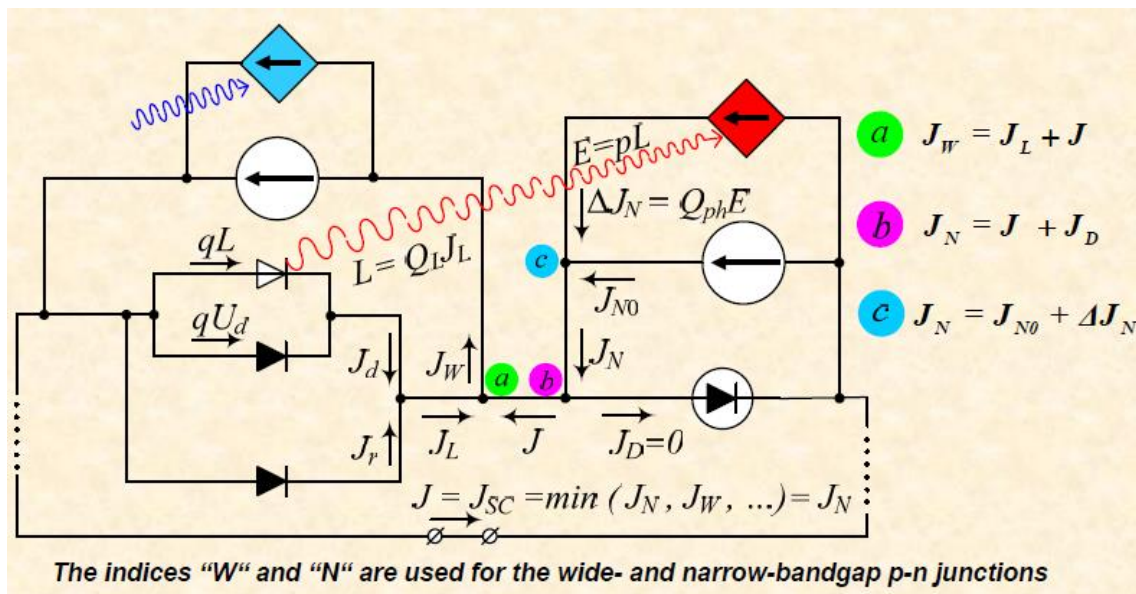


図 5-5 ルミネッセンスカップリング解析のための等価回路モデル^[2]

図 5-5 も 2 接合の場合で考えているが、左側がトップセル、右側がボトムセルに対応しており、トップセルへのバイアス光強度（青の矢印）を変化させたとき、トップセルから放射されたフォトンがボトムセルに影響を与え（赤い矢印）、出力電流 J にどのような変化が起こるかをシミュレーションで計算している。このシミュレーションで着目するのは、トップセルで失われる再結合電流 J_L と出力電流 J （今後は J_{out} と記述する）である。それぞれが電流-電圧特性のどの部分に対応するかを以下に示す。

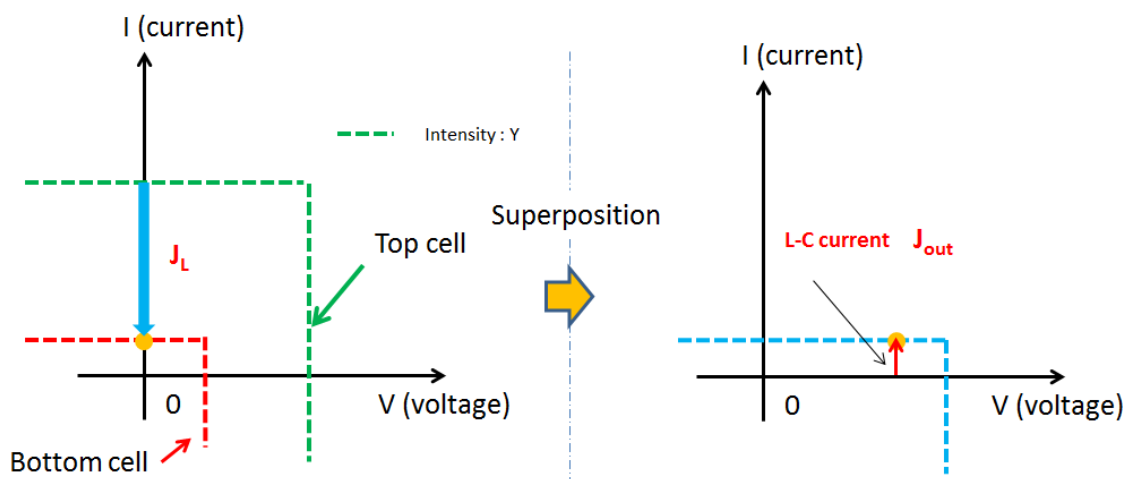


図 5-6 再結合電流 J_L と出力電流 J_{out} の対応

トップセルへのバイアス光強度を大きくしていけば再結合電流 J_L も増加し、ルミネッセンスカップリングが起きるようになれば J_{out} も大きくなる。この 2 つがルミネッセンスカップリ

ングの原因と結果であることから、これらを次のような関係式で結ぶ。

$$\gamma = \frac{J_{out}}{J_L}$$

上式を今後「カップリング係数」と呼ぶ。このカップリング係数 γ が再結合電流 J_L とどのような関係になるかを調べて計算し、ルミネッセンスカップリングを評価していく。このように電流－電圧特性から評価していく手法は実験そのものも容易にでき、直観的に理解しやすいのだが、解析をしていく上でいくつか改善すべき点がある。それらを以下に列挙する。

- ① 自己無撞着な計算を行っていない
- ② 直列抵抗・並列抵抗の影響を無視している
- ③ カップリング係数のバイアス依存性を見るのが困難

これら 3 点をそれぞれ説明する。

先ず①だが、これはルミネッセンスカップリングを考える上で非常に重要な点である。トップセルからの発光によりボトムセルが電流を生成すれば、その影響を受けてトップセルの発光量が減り、ボトムセルの生成電流が減少し、更にその影響を受けてトップセルの発光量が増大する、というように、本来はサブセル間で互いに影響を与えながらルミネッセンスカップリング電流が決定されるのだが、このシミュレーションではそれを無視している。この詳細に関しては 5-4-2 項で詳述する。

次の②では、実デバイスでは必ず直列抵抗・並列抵抗を含む。しかしシミュレーションで計算をする際、抵抗成分があることにより電流－電圧特性が超越方程式となってしまう、解析的に解くことが困難になってしまう。この煩雑性を軽減するためにこれら抵抗成分を除去しているのだが、ルミネッセンスカップリングもこれらの影響を受ける筈である。よって、より厳密な計算が必要である。

最後の③は、図 5-5 にも記述されているが、ボトムセルの再結合電流が $0\text{A}/\text{cm}^2$ と仮定されている。これはボトムセルにかけられている電圧が 0V であることを示しており、ボトムセルの短絡電流ポイントとなる。つまり、このボトムセルが 0V を満たすような外部バイアス電圧のカップリング係数のみ評価できるということになる。ボトムセルの電圧が 0V でなくなると、再結合電流 J_L に変化が生じてしまい、評価することが難しくになってしまう。

これまでルミネッセンスカップリングを計算により評価しようとしてきたグループ⁴も、上記 3 点については考慮していない。

5-3-2 外部量子効率 (EQE)

多接合タンデム太陽電池の場合、各サブセルの EQE を測定する際、外部バイアス電圧の設定に注意を払わなければいけないことは 3-2-1 項で述べた。しかしそれだけでなく、測定対象以外のサブセルに対して照射しているバイアス光強度を変化させると EQE も同様に変化してしまう。その影響を最もよく反映して測定できるのが、3 接合

In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge タンデム太陽電池のボトムセル Ge である。EQE に対して変化を与える原因は 2 種類あり、1 つ目がボトムセルのシャント抵抗、2 つ目がミドルセルとボトムセルの間で起こるルミネッセンスカップリングによるものである。シャント抵抗によるものはこれまで非常に研究されてきたが、2 つ目のルミネッセンスカップリングによるものと合わせて詳細に記述しているのが[3]である。先ずボトムセルの EQE がバイアス光強度によってどのように変化するかを図 5-7 を用いて説明する。

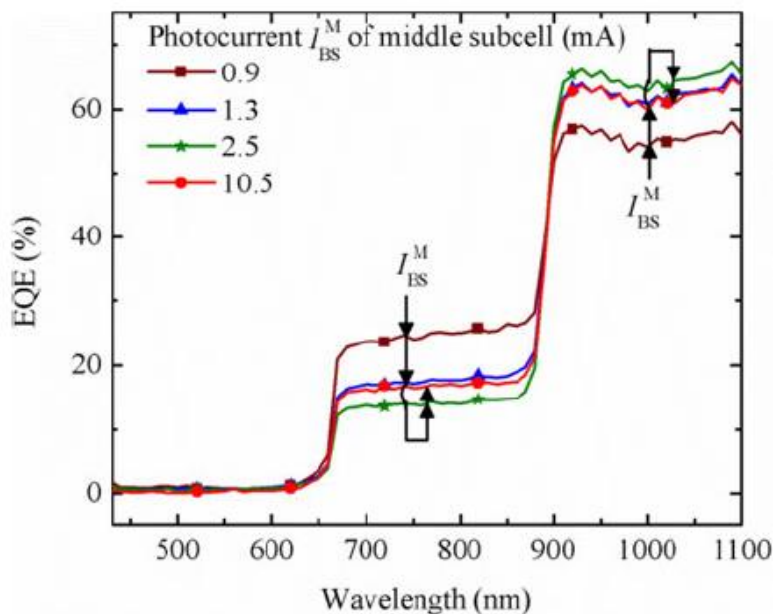


図 5-7 ボトムセルの EQE^[3]

ミドルセル GaAs の光吸収波長領域は、およそ 600nm～900nm であるため Ge ボトムセルの光吸収波長領域は、900nm 以降を想定している。それを反映して 900nm 付近で急峻に立ち上がっているのが分かる。しかし、本来想定している吸収波長領域外であるミドルセル GaAs の 600nm～900nm 内でも EQE の信号が測定されている。理想的には、この領域に関しては 600nm 以下の反応同様に 0 となる筈である。このミドルセルの領域で現れる信号のことをアーティファクト (artifact) と呼ぶ。ミドルセルの領域に現れる信号は、ミドルセルのバイアス光強度を大きくしていくと始めは小さくなっていくが、ある程度バイアス光強度を大きくすると逆に大きくなってしまふ。この始めの信号が小さくなっていく理由は、ボトムセルのシャント抵抗の影響が小さくなるためである。その後の信号が逆に大きくなる理由が、ルミネッセンスカップリングによるものである。この動きと全く逆の動きがボトムセル本来の吸収波長領域内で起こる。つまり始めは信号が大きくなるのだが、徐々に信号が弱くなってしまふ。この現象について以下の図を用いて説明をする。

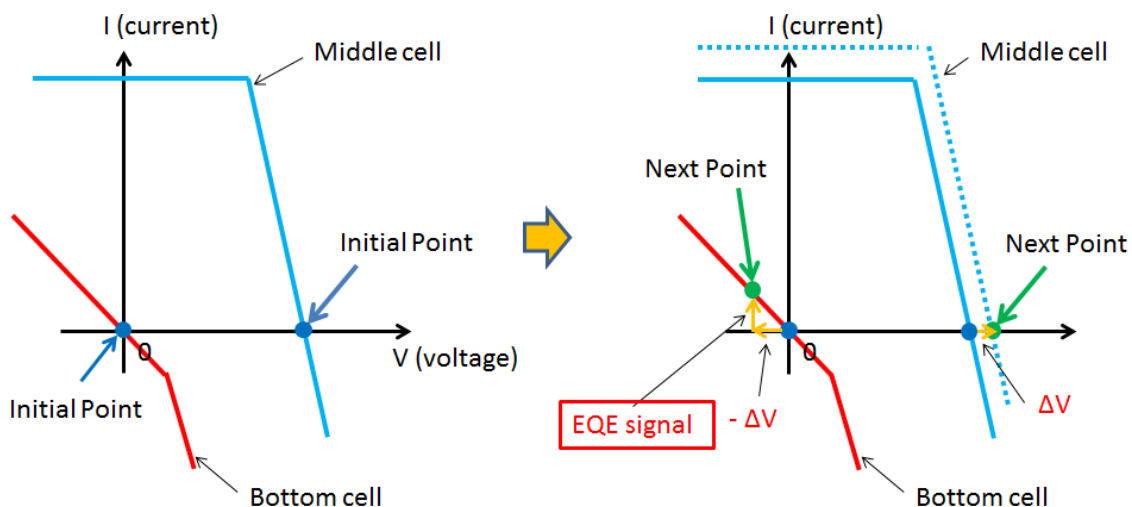


図 5-8 ミドルセル領域で信号が出てしまう理由（シャント抵抗）

左図：モノクロ照射前、右図：モノクロ照射後

※モノクロ光波長：600nm～900nm

各サブセルの電流－電圧特性が分かっていると仮定する。またここではトップセルは無視し、ミドルセルとボトムセルのみで考える。モノクロ照射前、外部バイアスが例えば 2V の時、各サブセルの動作ポイントが左図の●であったとする。EQE 測定なので次にモノクロ光を照射すると、モノクロ光の波長は 600nm～900nm なのでミドルセルが反応するため右図の点線のように変化する。すると先程の●から電圧が僅かだが●へシフトする。この電圧シフト量を ΔV とすると、外部バイアスは 2V で固定されているため、ミドルセル以外でこのシフトしてしまった電圧 ΔV を打ち消さなければいけない。そのためボトムセルが $-\Delta V$ だけ動作ポイントをシフトさせることになる。この電圧シフトが起きることで、●から●となり、その差分だけ電流が流れたことになる。これが、ミドルセル波長領域でボトムセルが反応してしまう理由である（厳密には、ボトムセルの動作ポイントが変化することでミドルセルの動作ポイントが変化するため最初の電圧シフト量に変化し、その変化した電圧シフト量だけボトムセルが電圧シフトする、というように自己無撞着な計算で最終的な動作ポイントが決定される）。つまり、この信号を消すには 2 通り考えられる。1 つ目は、ボトムセルのシャント抵抗を無限大にしてしまえば、どれだけ電圧シフトが起きても電流変化が起きないため信号は出ない。2 つ目は、ミドルセルに照射するバイアス光強度を大きくすれば、元からミドルセルが発生している電圧が大きくなるためモノクロ光によって生じる電圧シフト量が相対的に小さくなり、ボトムセルに与える影響を小さくすることができ、信号を消すことができる。そこで、2 つ目の方法であるバイアス光強度を大きくしていけばいいかというところではなく、今度はルミネッセンスカップリングの影響により信号が大きくなってしまう。これは以下の図を用いて説明を行う。

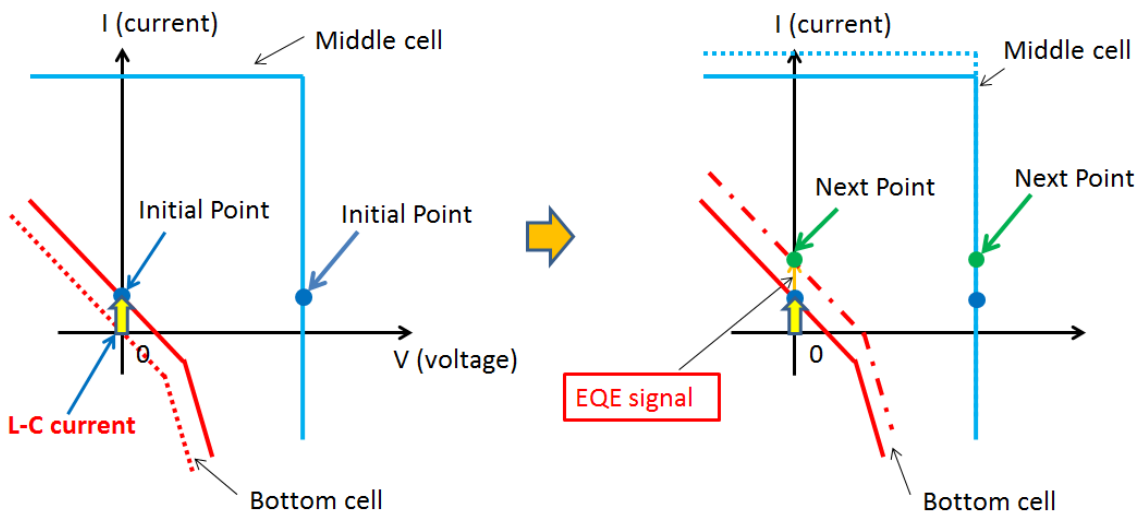


図 5-9 ミドルセル領域で信号が出てしまう理由（ルミネッセンスカップリング）

左図：モノクロ光照射前、右図：モノクロ光照射後

※モノクロ光波長：600nm～900nm

図 5-8 で考えたように、ここでも各サブセルの電流－電圧特性が分かったと仮定する。またここではトップセルは無視し、ミドルセルとボトムセルのみで考える。ミドルセルへ照射しているバイアス光強度を大きくしていくと、ミドルセルの再結合電流が増加していく。この再結合電流の内、発光再結合によって失われる量が大きくなると、ミドルセルから放射される光によってボトムセルが電流を生成し始める。その様子を表しているのが図 5-9 の左図である。ボトムセルへバイアス光を照射していないので本来は赤点線のグラフになる筈が、電流を生成し実線のグラフになる。この電流の増加が、ルミネッセンスカップリング電流（L-C current）である。このような状態になっているセルに対して、ミドルセルが吸収する波長領域のモノクロ光を照射した際の各サブセルの電流－電圧特性が図 5-9 の右図となる。先ずミドルセルの電流が増加する。すると、ミドルセルの再結合電流がさらに増加する。これにより、ボトムセルが生成していたルミネッセンスカップリング電流に変化が起き、モノクロ光照射前と比べて僅かに増加する。この信号が EQE 測定で計測されることになる。以上より、図 5-7 のようにミドルセルへ照射するバイアス光強度を変化させることで最初は信号が弱くなるのだが、その後は信号が再び大きくなるという多接合太陽電池特有の現象であるルミネッセンスカップリングによる影響を測定することができる。5-3-1 項で説明をした[2]と同様に、EQE 測定したデータを解析する際に使用するモデルではシャント抵抗の影響を無視している。そのため、5-3-1 項で説明をしたようにより厳密な計算が必要とされる。

5-4 改善したモデルによるルミネッセンスカップリングの解析と評価

本節では 5-3 節で述べたこれまでのルミネッセンスカップリング解析における改善点をふまえた上での解析を行い、実測値との比較を行う。まず、解析をする上で必要となるモデルを立てる。その後、ルミネッセンスカップリングを考える上で重要となる自己無撞着な計算について説明をし、5-3 節で述べた直流電流-電圧特性・EQE 測定などを厳密な計算をするとどのような違いが生まれるかを説明する。

5-4-1 等価回路モデル

本研究で検討した等価回路モデルは次の 2 種類になる。

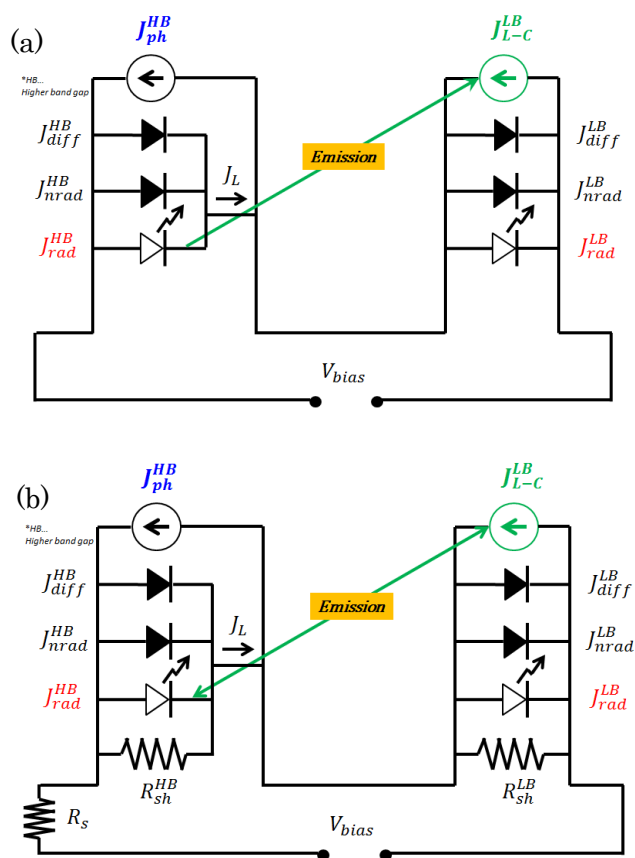


図 5-10 等価回路モデル (a)直列・並列抵抗なし、(b)直列・並列抵抗あり

※2 接合タンデム太陽電池の場合

トップセルにはバイアス光を照射 ボトムセルは暗状態

図 5-10(a)は、これまで提案されてきたモデルと同様、直列抵抗と並列抵抗を無視したモデルとなっている。それに対して、図 5-10(b)は、より厳密に計算を行うために直列抵抗・並列抵抗を加えたモデルとなっている。このモデルとすることで、5-3 節で述べた問題点を 1 つ解決することができる。これら 2 つを用いて、これまでの解析結果と比べてどの程度の

補正が必要となるのかを調べる。

この等価回路モデルには、各サブセルにダイオードが 3 個並べてある。それぞれは、 J_{diff} : 拡散電流（非発光）、 J_{nrad} : 非発光再結合電流（非発光）、 J_{rad} : 発光再結合電流（発光）を表している。それぞれは以下のような式で表される。

$$J_{diff} = J_{diff,0} \left[\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right], \quad J_{diff,0} = qn_i^2 \left(\frac{D_n}{N_A L_n} + \frac{D_p}{N_D L_p} \right)$$

$$J_{nrad} = J_{nrad,0} \left[\exp\left(\frac{qV}{2kT}\right) - 1 \right], \quad J_{nrad,0} = qn_i \frac{W_n + W_p}{\sqrt{\tau_n \tau_p}}$$

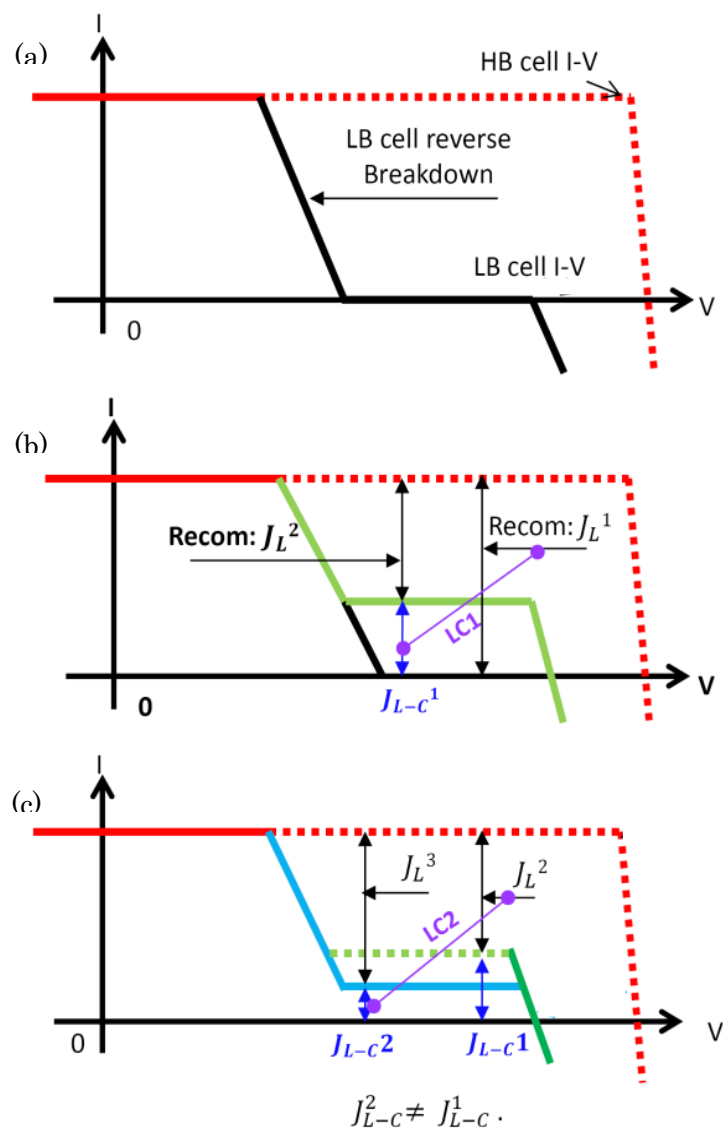
$$J_{rad} = J_{rad,0} \left[\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right], \quad J_{rad,0} = q \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} EQE(\lambda) \varphi_{bb}(\lambda) d\lambda$$

式中の各変数は、 q : 電荷素量、 T : 絶対温度、 n_i^2 : 真性キャリア密度、 D_n : 電子拡散係数、 D_p : ホール拡散係数、 N_A : アクセプター密度、 N_D : ドナー密度、 L_n : 電子拡散長、 L_p : ホール拡散長、 W_n : 空乏層幅（n 側）、 W_p : 空乏層幅（p 側）、 τ_n : 電子再結合寿命、 τ_p : ホール再結合寿命、 $EQE(\lambda)$: 外部量子効率、 $\varphi_{bb}(\lambda)$: 黒体輻射、 λ : 波長、を表している。ここで、 J_{rad} は[4]で記述されている **Reciprocity-Theory** から導かれるものである。 J_{diff} と J_{nrad} は非発光成分であるため、ルミネッセンスカップリングには影響を及ぼさない。一方、 J_{rad} は発光成分であるため、このダイオードに流れる電流はルミネッセンスカップリングに影響を与え、ボトムセルの電流源値を変化させる。暗状態のボトムセルが電流を生成するためには、トップセルからの発光成分のみを考える。特に断りがない限り、トップセルに照射したバイアス光が漏れてくることはないとする。上記パラメータの値・計算式は[6], [7], [8]などを参照した。

5-4-2 自己無撞着な計算

ここでも 2 接合セルの場合で考えるが、ボトムセルで生成されるルミネッセンスカップリング電流はトップセルの発光再結合電流 (J_{rad}) に依存する。よって、ルミネッセンスカップリング電流は必ず自己無撞着な計算によって求めなければいけない。それを以下の図を用いて説明する。図 5-11(a)が初期状態である。この時トップセルに対してはバイアス光を照射するが、ボトムセルは暗状態にしておく。そのためボトムセルに電流律速がかかるが、ボトムセルに逆バイアスがかかっているとブレークダウンを起こすため、ある電圧以下では電流律速がトップセルにかかるようになる。そのため電流-電圧特性を見るとトップセル、もしくはボトムセルどちらかに電流律速がかかったグラフとなる。ボトムセルに電流律速がかかっている電圧（電流が 0 となっているポイントなら任意に選べる）では、トップセルで生成されているキャリアは全てトップセル内の再結合過程で失われなければならない。その再結合電流が図 5-11(b)の J_L^1 である。この再結合電流の中には、もちろん発光によって失われる成分 (J_{rad}) もあるため、それに対応したルミネッセンスカップリング電流がボトムセルで生じる。その値が $J_L^1 - c$ である。これまでの手法では、ここで解析をストップしてい

たが本来はここでストップしてはいけない。何故なら、ボトムセルで J_{L-c}^1 が発生することによりトップセルの再結合電流が J_L^1 から J_L^2 へと変化するためである。 J_L^2 は明らかに J_L^1 よりも小さいため、図 5-11(c)に示してあるようなルミネッセンスカップリング電流 J_{L-c}^2 とならなければならない。すると再度、再結合電流が変化をする、というようなループが必ず起きなければならない。このループが最終的に終了するのは、 J_{L-c}^n と J_{L-c}^{n+1} の間に (n は繰り返し回数) $J_{L-c}^n \cong J_{L-c}^{n+1}$ という関係が成立する時になる。 J_{L-c}^1 と J_{L-c}^2 では明らかに $J_{L-c}^1 \neq J_{L-c}^2$ であるため、再度計算が必要となる。このような自己無撞着な計算を行うことによってのみ、正確なルミネッセンスカップリング電流を決定することができる。そのシミュレーションを行った様子が図 5-12 に示す。



】図 5-11 ルミネッセンスカップリング電流の決定方法^[9]

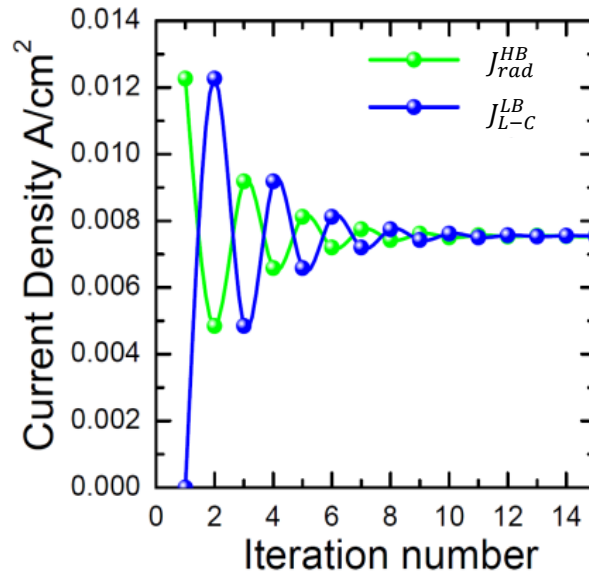


図 5-12 自己無撞着な計算によって決定されるルミネッセンスカップリング電流^[9]

このシミュレーションでは、トップセルの発光電流成分である J_{rad}^{HB} の値がそのままボトムセルの電流源値 J_{L-C}^{LB} になると仮定している。横軸は繰り返し回数になっており、ルミネッセンスカップリングが起こっていない初期状態では、 J_{L-C}^{LB} が0となっている。その次は初期状態で流れていた J_{rad}^{HB} の値がそのまま J_{L-C}^{LB} へと代入されているのが分かる。しかし、その発生した J_{L-C}^{LB} に影響されて J_{rad}^{HB} が減少しているのも分かる。このような過程を経て、最終的に電流値の振動がほぼ見られなくなるところでループを停止する。このシミュレーションでは $J_{L-C}^{LB} : 7.5\text{mA/cm}^2$ であった。もし自己無撞着な計算を行わずにループを停止したとすると、 $J_{L-C}^{LB} : 12.5\text{mA/cm}^2$ となり、 5mA/cm^2 もの誤差が生じることになっていた。この結果は、自己無撞着な計算の有用性を示している。

5-4-3 DC I-V 特性での評価：カップリング係数

改善された等価回路モデルと自己無撞着な計算を使用すると、5-3-1項で述べた直流電流－電圧特性評価の結果にどのような影響があるのかを調べる。影響を調べるために、以下のような順序で調べていく。

I. シミュレーションでの比較

- ① 図 5-10(a)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)
- ② 図 5-10(b)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)
- ③ 図 5-10(b)モデルを使って、直列・並列抵抗の依存性を見る (自己無撞着な計算を行う)

II. 実測値とシミュレーション結果の比較

実験・シミュレーションの方法は、図 5-13 を用いて説明する。

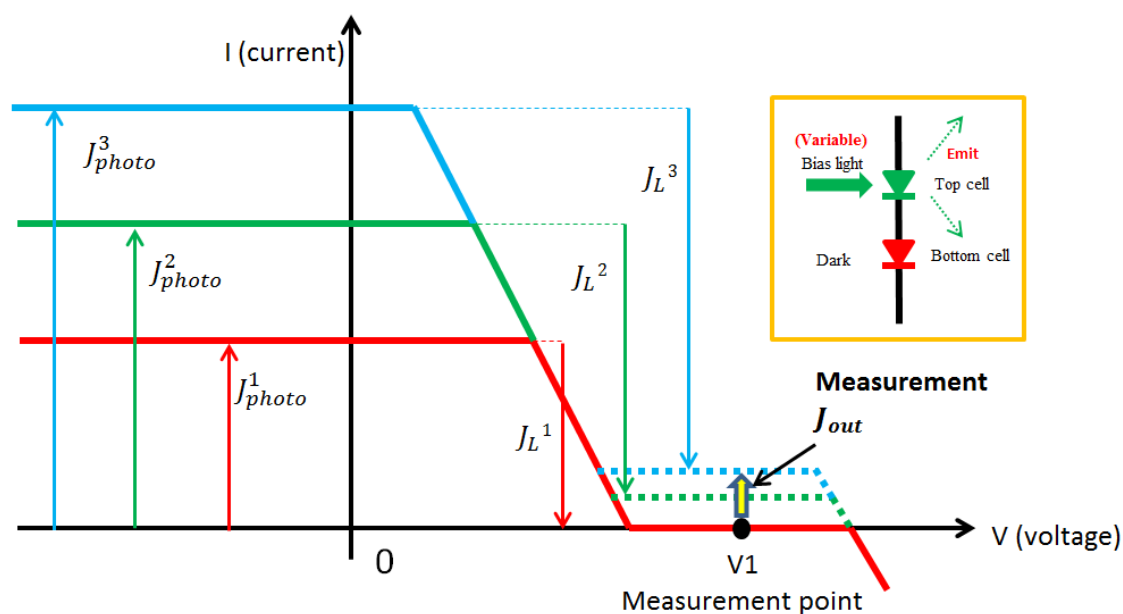


図 5-13 DC I-V 特性によるルミネッセンスカップリング評価

図 5-13 のグラフは、トップセル・ボトムセル両方の電流律速を見ることができる。バイアス電圧 $0V$ 前後の部分はトップセルに電流律速されており、バイアス電圧 $V1$ 前後ではボトムセルに電流律速がかけられている。これはトップセルにのみバイアス光を照射し、ボトムセルは暗状態であるためである（図 5-11 と同様の形状である）。

測定するのは出力電流 J_{out} であり、その測定するバイアス電圧のポイントを定める。図 5-13 では $V1$ である。ボトムセルは暗状態のままにし、変化させるものはトップセルに照射するバイアス光強度である。このバイアス光強度を変化させたとき、バイアス電圧 $V1$ における出力電流 J_{out} の変化を見る。そしてトップセルの再結合電流 J_L と J_{out} の比をとる。これが 5-3-1 項でも述べたカップリング係数 γ である。このカップリング係数がどのように変化するかをシミュレーションと実験値の両方から調べる。

またシミュレーションは 2 接合タンデム太陽電池で行う。セルは $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ と $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ の 2 種類とする。これは、3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池のトップセル/ミドルセル、ミドルセル/ボトムセルの組み合わせに対応する。トップセル/ボトムセルの組み合わせである $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ge}$ を考慮しない理由は、トップセルで放射された光子はボトムセルにまで届かずミドルセルで全て吸収されるという仮定をしたためである。シミュレーションする際に使用した各種パラメータは以下の表に示す。

表 5-1 各種ダイオードパラメータ

$J_{diff,0}$ [A/cm ²]	1.71×10^{-26}	1.16×10^{-19}	7.72×10^{-7}
$J_{nrad,0}$ [A/cm ²]	8.41×10^{-14}	2.03×10^{-10}	7.12×10^{-6}
$J_{rad,0}$ [A/cm ²] Ga _{0.99} In _{0.01} As/Ge	—————	1.59×10^{-20}	6.66×10^{-10}
$J_{rad,0}$ [A/cm ²] In _{0.49} Ga _{0.51} P/Ga _{0.99} In _{0.01} As	1.07×10^{-27}	1.10×10^{-20}	—————
R_s [Ω cm ²]	0.2	0.2	0.2
R_{sh} [Ω cm ²]	2.0×10^5	1.0×10^5	50

表 5-1 のパラメータを第 4 章でも用いた LTspice 上で作成された等価回路に代入して計算を行う。基本的には図 4-5 に示してあるように、Fortran と C 言語と LTspice を組み合わせることにより、厳密なルミネッセンスカップリング電流の計算を可能にする。

最後にルミネッセンスカップリング電流 J_{L-C}^{LB} の決定法だが、図 5-10 でも示してあるようにルミネッセンスカップリング電流 J_{L-C}^{LB} はトップセルの発光再結合電流成分 J_{rad}^{HB} に依存する。

トップセルから放射される光の指向性は等方的であるため、放射光は外部に漏れる方向へ進行するものとボトムセルの下方向へ進行するものに二分されると考えられる。よって J_{rad}^{HB} の半分の値を J_{L-C}^{LB} とするところだが、図 5-12 のシミュレーションを行った時と同様、 $J_{rad}^{HB} = J_{L-C}^{LB}$ という関係を用いた。理由は、ルミネッセンスカップリングによって最大でどれだけの影響があるかを見積もっておけば、これ以上の変化は起きないとして考えることができるためである（※外部に漏れる方向へ進行した光が、表面での反射によって再度ボトムセルの方向へ進行していくということを考えれば、このような状況が起きないとも限らない）。これでシミュレーションをする上で必要な事柄がそろったので、以下にその結果を示す。

まず Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge の組み合わせで行う。またルミネッセンスカップリングが起きていない時の直流電流－電圧特性を以下に示す。図 5-14 には 2 つのグラフがあるが、1 つ目は Ge ボトムセルが暗状態、2 つ目は Ge ボトムセルにもバイアス光を照射した状態である。Ga_{0.99}In_{0.01}As トップセルへのバイアス光強度は変化させていないとしている。Ge ボトムセルへバイアス光を照射すると、赤線の電流が増加し持ち上げられている電圧の範囲がある。つまり、その領域は Ge ボトムセルに律速されており、変化をしない電圧領域は Ga_{0.99}In_{0.01}As トップセルに律速されているのが分かる。

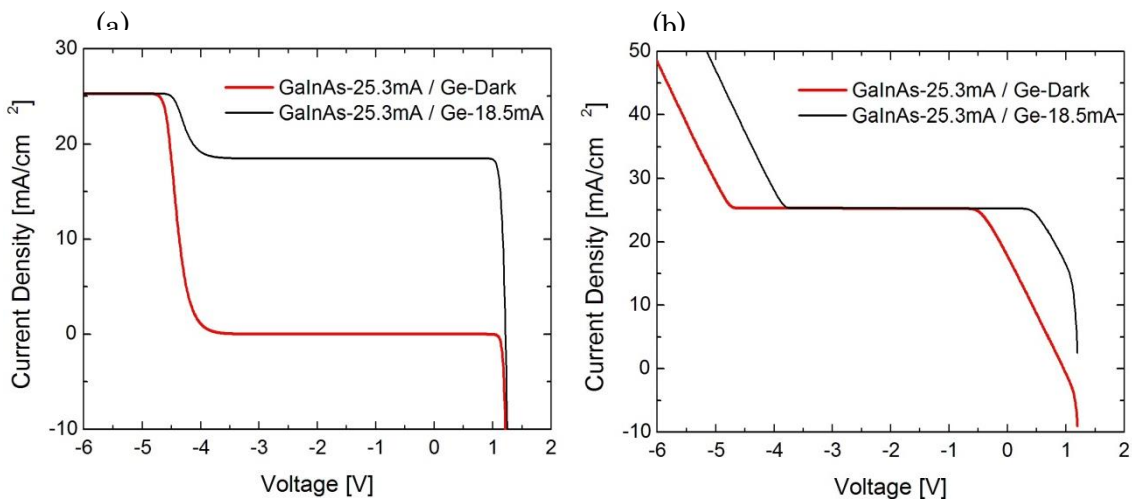


図 5-14 Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge の直流電流－電圧特性
 (a) 直列/並列抵抗なし (b) 直列/並列抵抗あり

I. シミュレーションでの比較

① 図 5-10(a)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)

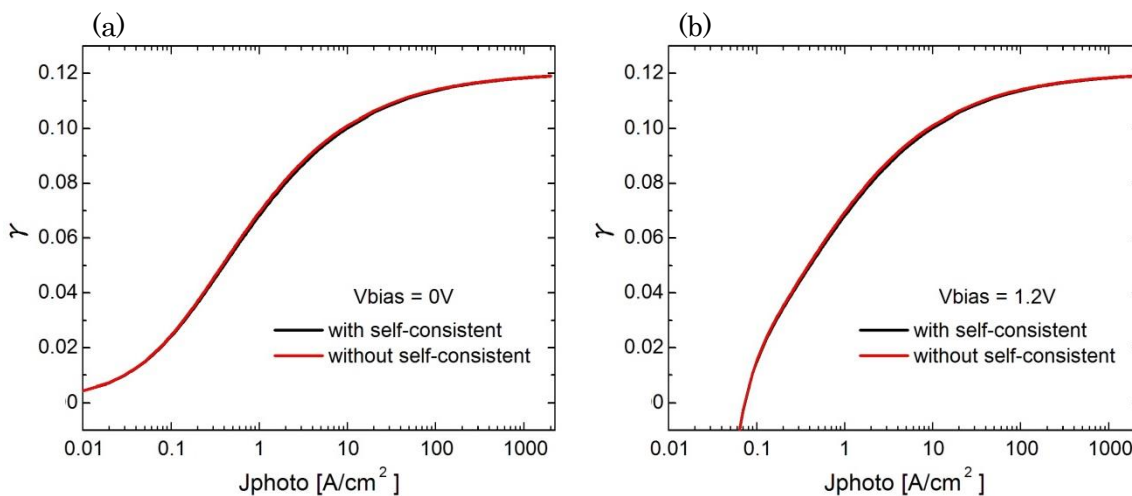


図 5-15 カップリング係数とバイアス光強度との関係
 (a) 外部バイアス 0V、 (b) 外部バイアス 1.2V

図 5-15 は、横軸にトップセルで生成された電流源値（短絡電流値）で、縦軸をカップリング係数 γ としている。図 5-15(a)、(b)はそれぞれ外部バイアスを 0V、1.2V と変更し、カップリング係数のバイアス依存性を見ている。これらは、図 5-14(a)の 0V と 1.2V でのカップリング係数に対応している。ここで、図 5-15 について三点述べる。①1 点目は、(a)、(b)両方とも自己無撞着に計算を行ったものの方が、自己無撞着に計算を行っていないものよりも

カップリング係数が小さくなっている。この原因は以下のように説明できる。図 5-12 にも示したように、自己無撞着な計算を行うことでカップリング電流が小さくなる。また、このシミュレーションでは図 5-10(a)モデルで考えるので、 J_{out} はほぼルミネッセンスカップリング電流で決定する（これはボトムセルが暗状態であるため、ボトムセルに電流流速がかかっているため）。カップリング係数 γ は、 J_{out}/J_L で定義されている。更に再結合電流 $J_L = J_{diff} + J_{nrad} + J_{rad} \cong J_{nrad}$ という近似をすることができるのであれば、カップリング係数 γ の分母が殆ど変化をしない（この近似はトップセルに大きなバイアス電圧がかけられていなければ成立する。今回の場合、トップセルへ照射するバイアス光強度が大きすぎなければよい）。するとカップリング係数 γ の分子が減少し、分母が変化しない、という状況になる。このような理由で、自己無撞着に計算を行うことで僅かにカップリング係数 γ が小さくなる。②2点目は、(a)、(b)両方ともに共通していることは、トップセルへのバイアス光強度を大きくしていくとカップリング係数 γ が 0.12 程度の値へ飽和していく様子が見られる。これは次のような理由による。このシミュレーションでは、トップセルの発光再結合電流成分 J_{rad}^{HB} がそのままボトムセルのルミネッセンスカップリング電流 J_{L-C}^{LB} になると仮定をしているので、 J_{rad}^{HB} の定義より J_{L-C}^{LB} は次のように表せる。

$$\begin{aligned} J_{L-C}^{LB} &= J_{rad}^{HB} \\ &= J_{rad,0}^{HB} \left[\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right] \end{aligned}$$

更に、トップセルの再結合電流 J_L は次のように近似することができる。

$$J_L = J_{diff}^{HB} + J_{nrad}^{HB} + J_{rad}^{HB} \cong J_{diff}^{HB} + J_{rad}^{HB}$$

何故なら、バイアス光強度が大きくなればトップセルに生じるバイアス電圧が大きくなり、それぞれの再結合電流成分は J_{diff}^{HB} 、 $J_{rad}^{HB} \propto \exp[qV/kT]$ 、 $J_{nrad}^{HB} \propto \exp[qV/2kT]$ に比例するため、バイアス電圧が大きい時には非発光再結合電流成分 J_{nrad}^{HB} はほぼ無視することができるからである。すると、カップリング係数 γ は J_{out} を J_{L-C}^{LB} でほぼ近似できることを考慮すれば次のように表せる。

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{J_{out}}{J_L} \\ &\cong \frac{J_{L-C}^{LB}}{J_L} \\ &\cong \frac{J_{L-C}^{LB}}{J_{diff}^{HB} + J_{rad}^{HB}} \\ &= \frac{J_{rad,0}^{HB} \left[\exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right]}{(J_{diff,0}^{HB} + J_{rad,0}^{HB}) \left\{ \exp\left(\frac{qV}{kT}\right) - 1 \right\}} \\ &= \frac{J_{rad,0}^{HB}}{J_{diff,0}^{HB} + J_{rad,0}^{HB}} \end{aligned}$$

つまり、カップリング係数 γ はほぼトップセルのダイオードパラメータ、それも拡散電流係数と発光再結合電流係数の 2 つの比だけで決定される。試みに表 5-1 にあるパラメータを使って上式で表されるカップリング係数 γ を計算してみると次のようになる。

$$\begin{aligned}\gamma &\cong \frac{J_{rad,0}^{HB}}{J_{diff,0}^{HB} + J_{rad,0}^{HB}} \\ &= \frac{1.59 \times 10^{-20}}{1.16 \times 10^{-19} + 1.59 \times 10^{-20}} \cong 0.12\end{aligned}$$

この結果は、図 5-15 の飽和値とほぼ一致する。このような理由でカップリング係数 γ は飽和する。この結果は、サブセル間同士のルミネッセンスカップリングを検討する際に有用である。何故なら、ルミネッセンスカップリングが最大でもどの程度起こりうるのかをトップセルのダイオード特性から即座に導くことができるためである。逆に、カップリング係数 γ を実験で求めることができれば、ダイオードの拡散係数と発光再結合係数の比を求めることができる。③三点目は、トップセルへのバイアス光強度が小さい時に(a)、(b)とで違いが生じている点である。(a)の場合は、カップリング係数 γ が 0 より小さくはならず漸近しているのに対し、(b)ではカップリング係数 γ が 0 より小さくなっている。これは、図 5-14(a)の直流電流－電圧特性のバイアス電圧 0V、1.2V に対応する電流値を見れば分かる。0V では、出力電流 J_{out} はほぼ 0 であるが、0 より小さくなることはない。それに対し 1.2V では、最初は出力電流 J_{out} が 0 より小さく負になっている。このため、カップリング係数 γ の定義 J_{out}/J_L より、 γ は負になってしまう。ただ、ルミネッセンスカップリングの影響が大きくなるにしたがい、1.2V の出力電流が 0 よりも大きくなることによりカップリング係数 γ が正となる。

ここで、これまで報告されてきたカップリング係数 γ を以下に示す。

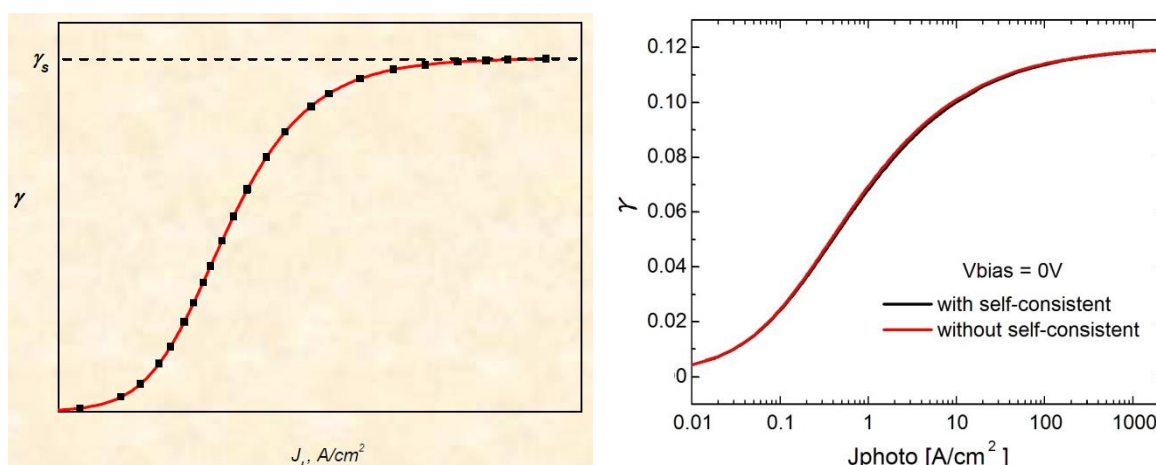


図 5-16 従来モデルでのカップリング係数 γ との比較^[2]

図 5-16 の左図がこれまでのモデルで計算されたカップリング係数 γ であるが、非常によく再現されているのが分かる。ただし、両者とも直列抵抗・並列抵抗の影響を無視した状態でのシミュレーションとなっている。そこで、改良したモデルである図 5-10(b)を使った時にカップリング係数 γ がどのような振る舞いを示すか次に示す。

I. シミュレーションでの比較

②図 5-10(b)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)

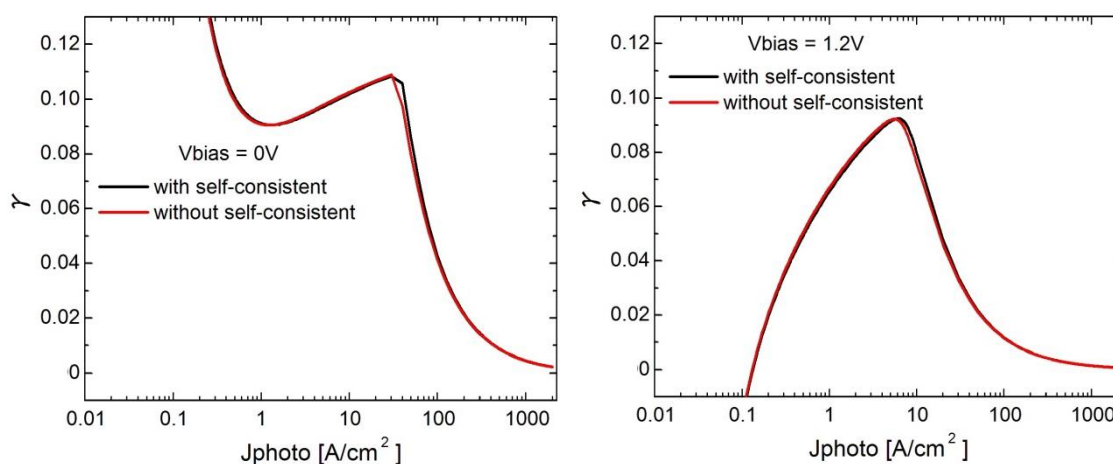


図 5-17 カップリング係数 γ とバイアス光強度との関係
(a) 外部バイアス 0V、 (b) 外部バイアス 1.2V

図 5-17 は、図 5-14(b)の直流電流－電圧特性の 0V、1.2V におけるカップリング係数 γ を計算したものである。図 5-15 で示した、抵抗成分を無視したカップリング係数 γ とは傾向が大きく異なっている。図 5-17 に関して(a)、(b)それぞれについて述べる。まず(a)について四点述べる。①1 つ目は、トップセルへのバイアス光強度がある程度小さい時 (J_{photo} が $1\text{A}/\text{cm}^2$ 以下の時)、カップリング係数 γ が非常に大きくなっている。これはボトムセルのシャント抵抗が小さいため漏れ電流が非常に大きくなり、本来は 0 である J_{out} が 0 でなくなってしまうためである (図 5-14(b)のボトムセルが暗状態時の直流電流－電圧特性のグラフを見ても分かる通り、0V 時はシャント抵抗の影響で 0mA となっていない。これが J_{out} として検出される)。詳細に検討するためには、次の図を用いる。

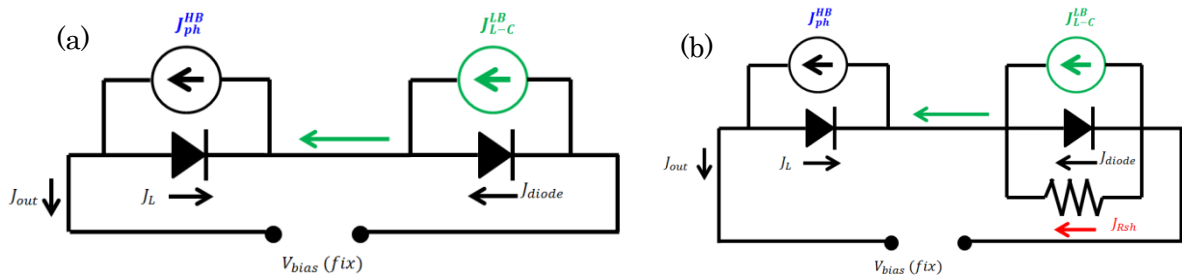


図 5-18 簡易な等価回路モデル
(a) 並列抵抗なし、(b) 並列抵抗あり

図 5-18(a)が I-①で求めた図 5-15 の結果に対応し、(b)が I-②で求めた図 5-17 に対応する。先ず図 5-18(a)を使ってバイアス光強度が小さい (J_{photo}^{HB} が小さい) 時に何故カップリング係数 γ (図 5-15(a)) が小さいのかを示す。ボトムセルへはバイアス光を照射していない暗状態であり、回路に流れる電流はボトムセルに律速をされ、ボトムセルのダイオードの逆方向飽和電流とルミネッセンスカップリング電流の合計 ($J_{out} = J_{L-C}^{LB} + J_{diode}$) だけしか流れない。 J_{diode} は非常に小さいため、 J_{out} を決定するのはほぼ J_{L-C}^{LB} となる。しかし、バイアス光強度が小さい時は J_{L-C}^{LB} も小さくなる。結果、 J_{out} も小さくなる。カップリング係数 γ は J_{out}/J_L で定義されており、 $J_{out} \ll J_L$ よりカップリング係数 γ は 0 へと漸近していく。それに対して I②で求めた図 5-17(a)ではカップリング係数が発散しているが、これは図 5-18(b)を使って説明する。この回路に流れる電流は先程とは異なり、シャント抵抗に流れる成分も合計しなければいけないため $J_{out} = J_{L-C}^{LB} + J_{diode} + J_{Rsh}$ となる。シャント抵抗が小さければ J_{Rsh} が大きくなり、 $J_{out} \cong J_{Rsh}$ と近似することができる。バイアス光強度を小さくしていくと J_L も徐々に小さくなっていくことから、カップリング係数 γ が大きくなり発散していく。②2つ目は、 J_{photo} が $1 \sim 30 \text{ A/cm}^2$ の範囲では、直列・並列抵抗のないモデルで計算した図 5-15 と同じ傾向が見られる。これは、①で述べたシャント抵抗の影響よりもルミネッセンスカップリングによる影響が大きくなるためである。式で書くと、以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{J_{out}}{J_L} \\ &= \frac{J_{L-C}^{LB} + J_{Rsh}^{LB}}{J_L} \\ &\cong \frac{J_{L-C}^{LB}}{J_L} \quad \because J_{L-C}^{LB} \gg J_{Rsh}^{LB} \end{aligned}$$

上式は、I-①で求めたカップリング係数 γ と同様の式となっている。よって、I-①で示した図 5-15 の結果と同じ傾向が得られる。③3つ目は、 J_{photo} が $30 \text{ A/cm}^2 \sim$ では、カップリング係数が急激に減少している。これは、直列抵抗の影響によるものである。これに関しては図 5-19 を用いて説明する。

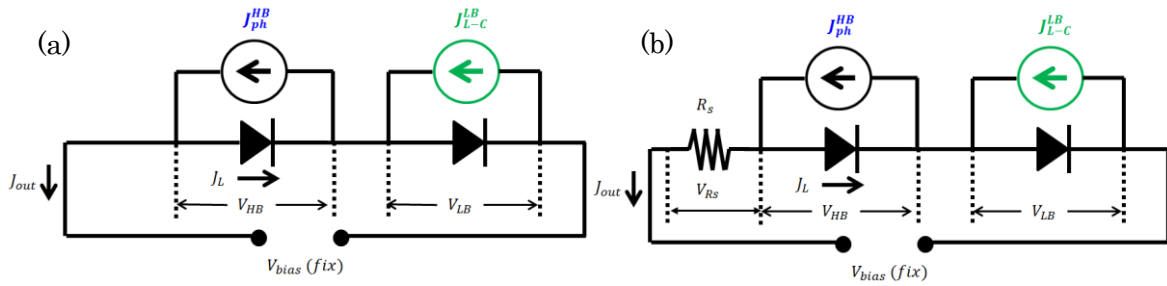


図 5-19 簡易な等価回路モデル
(a) 直列抵抗なし、(b) 直列抵抗あり

図 5-19(a)が I-①で求めた図 5-15 の結果に対応し、(b)が I-②で求めた図 5-17 に対応する。バイアス光強度を大きくしていったとき、直列抵抗がない場合はカップリング係数 γ が飽和することは I-①で説明を行ったので、ここでは図 5-19(b)の説明のみ行う。外部バイアス電圧はある値で固定されているので、(a)・(b)は次のような式が成立しなければならない。

$$V_{bias}(fix) = V_{HB} + V_{LB} \quad (a)$$

$$V_{bias}(fix) = V_{HB} + V_{LB} + V_{Rs} \quad (b)$$

ここで(a)・(b)共に同じバイアス光強度で光照射した時、出力電流 J_{out} が(a)・(b)で同じになり、再結合電流 J_L が等しくなればカップリング係数 γ に変化がないのだが、そのようなことは起こりえない。何故なら、上記の外部バイアス電圧の式を見ると(b)では V_{Rs} の項があるため、同じ出力電流 J_{out} が流れれば明らかに $V_{bias}(fix) (b) > V_{bias}(fix) (a)$ となる。外部バイアスは固定されているため、必ず等しくなる。そのために(b)の場合、出力電流 J_{out} を小さくしなければいけない。小さくするためには、トップセルの再結合電流 J_L を大きくする必要がある。これは $J_{out} = J_{photo}^{HB} - J_L$ という式から明らかである。カップリング係数 γ は J_{out}/J_L で定義されていることから、分子が小さくなり、更に分母が大きくなることからカップリング係数 γ は減少していく傾向となる。④4 つ目は、自己無撞着な計算をすることによる影響についてである。これは 3 種類の領域に分けることができる。1. $J_{photo} < 1 A/cm^2$ 、2. $1 A/cm^2 < J_{photo} < 30 A/cm^2$ 、3. $30 A/cm^2 < J_{photo}$ である。先ず $J_{photo} < 1 A/cm^2$ の領域だが、ここでは自己無撞着な計算を行った方が、カップリング係数 γ が大きい。これは次の図 5-20 を使って説明する。

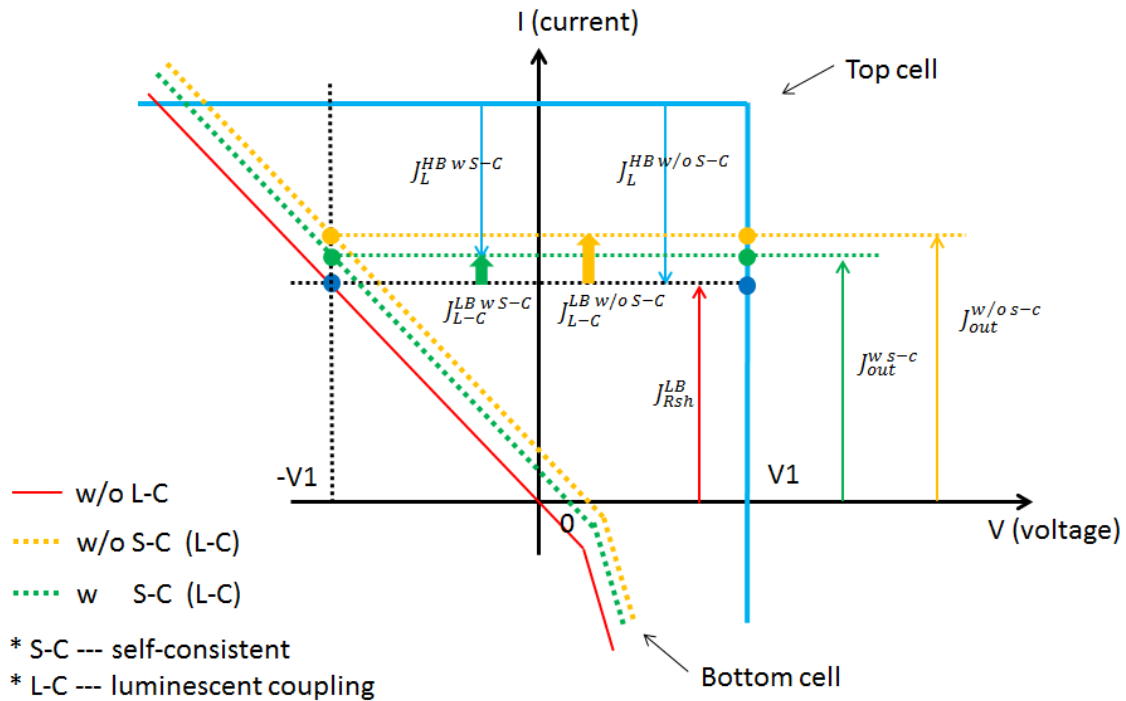


図 5-20 各サブセルの直流電流－電圧特性

図 5-20 は、各サブセルの直流電流－電圧特性が分かっているとしたときのグラフになる。ボトムセルのグラフが 3 種類あるが、①赤線はトップセルとルミネッセンスカップリングがまだ起きていない状態、②緑線はルミネッセンスカップリングが起こり、かつ自己無撞着な計算をされた状態、③橙線はルミネッセンスカップリングが起こり、かつ自己無撞着な計算をされていない状態、をそれぞれ表している。外部バイアス電圧が 0V で固定をされているため、トップセルのバイアス電圧が V_1 であれば、ボトムセルは $-V_1$ となる。出力電流 J_{out} は、次式で表すことができる。

$$J_{out} = J_{photo}^{HB} - J_{diff,0}^{HB} \left[\exp \left\{ \frac{q(V_1 + J_{out}R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{HB} \left[\exp \left\{ \frac{q(V_1 + J_{out}R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{HB} \left[\exp \left\{ \frac{q(V_1 + J_{out}R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - \frac{V_1 + J_{out}R_s}{R_{sh}^{HB}} \quad (a)$$

$$J_{out} = J_{L-C}^{LB} - J_{diff,0}^{LB} \left[\exp \left\{ \frac{q(-V_1 + J_{out}R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{LB} \left[\exp \left\{ \frac{q(-V_1 + J_{out}R_s)}{2kT} \right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{LB} \left[\exp \left\{ \frac{q(-V_1 + J_{out}R_s)}{kT} \right\} - 1 \right] - \frac{-V_1 + J_{out}R_s}{R_{sh}^{LB}} \quad (b)$$

ここで、(a)式はトップセル、(b)式はボトムセルのパラメータを用いて表した式になる。回路に流れる電流は等しいので出力電流 J_{out} は共通となっている。 $J_{photo} < 1 A/cm^2$ の領域では出力電流 J_{out} がまだ小さいため、 $V_1 > J_{out}R_s$ という関係が成立するため、両式は次のように近似できる。

$$J_{out} \cong J_{photo}^{HB} - J_{diff,0}^{HB} \left[\exp\left\{\frac{q(V_1)}{kT}\right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{HB} \left[\exp\left\{\frac{q(V_1)}{2kT}\right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{HB} \left[\exp\left\{\frac{q(V_1)}{kT}\right\} - 1 \right] - \frac{V_1}{R_{sh}^{HB}} \quad (a)'$$

$$J_{out} \cong J_{L-c}^{LB} - J_{diff,0}^{LB} \left[\exp\left\{\frac{q(-V_1)}{kT}\right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{LB} \left[\exp\left\{\frac{q(-V_1)}{2kT}\right\} - 1 \right] - J_{rad,0}^{LB} \left[\exp\left\{\frac{q(-V_1)}{kT}\right\} - 1 \right] - \frac{-V_1}{R_{sh}^{LB}} \quad (b)'$$

(b)'式の第2・3・4項は逆方向飽和電流であるため、非常に小さいため更に次式へと変形できる。

$$J_{out} \cong J_{L-c}^{LB} - \frac{-V_1}{R_{sh}^{LB}} \quad (c)$$

図 5-20 にもあるように、 $J_{Rsh}^{LB} = \frac{V_1}{R_{sh}^{LB}}$ で定義をすれば、出力電流 J_{out} は最終的に次式で表すこ

とができる。

$$J_{out} = J_{L-c}^{LB} + J_{Rsh}^{LB}$$

次に、(a)'式の第二から五項まで全ての合計値が再結合電流 J_L^{HB} であるため、(a)'式を次のように表す。

$$\begin{aligned} J_{out} &\cong J_{photo}^{HB} - J_L^{HB} \\ \therefore J_L^{HB} &\cong J_{photo}^{HB} - J_{out} \end{aligned}$$

更に出力電流 J_{out} を代入すると、

$$\therefore J_L^{HB} = J_{photo}^{HB} - J_{L-c}^{LB} - J_{Rsh}^{LB}$$

との式を得ることができる。以上より、カップリング係数 γ は次式で表される。

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{J_{out}}{J_L^{HB}} \\ \gamma &= \frac{J_{L-c}^{LB} + J_{Rsh}^{LB}}{J_{photo}^{HB} - J_{L-c}^{LB} - J_{Rsh}^{LB}} \end{aligned}$$

ここで得られたカップリング係数 γ は、実は自己無撞着な計算を行った際に得られるものである。何故なら、再結合電流 J_L^{HB} と出力電流 J_{out} の合計が J_{photo}^{HB} になっているためである（※自己無撞着な計算を行っていない場合は、 J_L^{HB} と J_{out} の合計は J_{photo}^{HB} になっていない（図 5-20 を見れば明らか）。この場合、(a)・(b)式のように記述することができないため）。よって、自己無撞着な計算で得られるカップリング係数 $\gamma^{w s-c}$ と、自己無撞着な計算をしないで得られるカップリング係数 $\gamma^{w/o s-c}$ は、図も参考にすると次のようにそれぞれ表すことができる。

$$\gamma^{w s-c} = \frac{J_{L-c}^{LB w s-c} + J_{Rsh}^{LB}}{J_{photo}^{HB} - J_{L-c}^{LB w s-c} - J_{Rsh}^{LB}}$$

$$\gamma^{w/o s-c} = \frac{J_{L-c}^{LB w/o s-c} + J_{Rsh}^{LB}}{J_{photo}^{HB} - J_{Rsh}^{LB}}$$

上式カップリング係数 $\gamma^{w/o s-c}$ の分母に $J_{L-C}^{LB w/o s-c}$ が含まれていないことが、自己無撞着に計算をしていないことを表している。今は $J_{photo} < 1 A/cm^2$ の領域であるため、 $J_{L-C}^{LB w s-c}$ と $J_{L-C}^{LB w/o s-c}$ の間にそれ程大きな差は生じない(図 5-20 では分かりやすいように差分を大きくしているだけである)。つまり、カップリング係数の分子は等しいと考えることができる。しかし、分母には明らかに違いが生じている。カップリング係数 $\gamma^{w s-c}$ の方が、 $J_{L-C}^{LB w s-c}$ の影響により分母が小さくなるため、 $\gamma^{w s-c} > \gamma^{w/o s-c}$ という関係が成り立つ。次に 2 つ目の領域である、 $2. 1 A/cm^2 < J_{photo} < 30 A/cm^2$ であるが、この領域は図 5-15 と同じ傾向であるため、既に説明は行っている。よってここでは説明を省略する。最後に 3 つ目の領域である、 $3. 30 A/cm^2 < J_{photo}$ について考える。これは図 5-19(b)を使うと分かりやすい。 J_{photo} が非常に大きい領域では、 R_s の効果を受けて出力電流 J_{out} が小さくなり再結合電流 J_L が大きくなることは既に述べた。更に出力電流 J_{out} はボトムセルに律速されているため、ルミネセンスカップリング電流 J_{L-C}^{LB} にも依存する。 J_{L-C}^{LB} が大きければ必然的に J_{out} も大きくなる。つまり、 J_{L-C}^{LB} が大きければ R_s の効果を受けて J_{out} が小さくなる、とすることができる。自己無撞着に計算をしない場合の方が、考慮して計算する場合よりも J_{L-C}^{LB} が大きくなることから、カップリング係数 $\gamma^{w/o s-c}$ が先に減少する。その後、 $\gamma^{w s-c}$ が追いかけるようにして減少する。

以上で、図 5-17(a)に関する説明を終了する。次に図 5-17(b)についてだが、このグラフは図 5-15(b)と同じである。自己無撞着に計算した場合としていない場合との比較も、図 5-17(a)についての説明を参照すればよい。ただ唯一異なる点としては、カップリング係数 γ の減少し始める J_{photo} の値が小さいことである。この原因は、外部バイアス電圧を 1.2V に設定しているため、より直列抵抗の影響を受けやすくなるため、外部バイアス電圧 0V の時よりも J_{photo} が小さい段階でカップリング係数 γ が減少することになる。

I. シミュレーションでの比較

③図 5-10(b)モデルを使って、直列・並列抵抗の依存性を見る (自己無撞着な計算を行う)

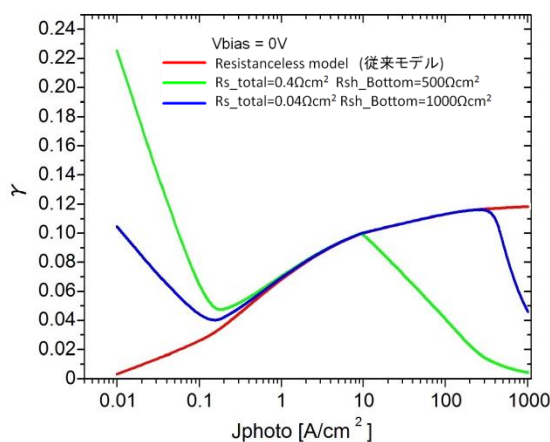


図 5-21 カップリング係数 γ の直列・並列抵抗依存性^[9]

図 5-21 がカップリング係数の直列・並列抵抗の依存性を表している。トップセルへのバイアス光強度が小さい領域ではカップリング係数 γ が従来モデルよりも大きくなっているのが分かる。これはボトムセルの並列抵抗による影響であり、並列抵抗が小さければよりその影響を受けているのが分かる。またバイアス光強度が大きすぎると直列抵抗の影響を受けてカップリング係数 γ が小さくなっているのが分かる。これも直列抵抗が大きい方が、小さくなる J_{photo} が小さいのが分かる。ちょうどその中間領域では、従来モデル図 5-10(a)と全く同じ傾向となる。つまり、この領域は純粋にルミネッセンスカップリングの効果を見ていることになる。このように、従来モデルでは計算することができなかったカップリング係数 γ をより厳密に計算することで、これまでは現れなかった傾向を見ることができた。それでは次に、この厳密な計算によって求めたカップリング係数 γ が実験で求めたものと比較するとどうなるのかを次に示す。

II. 実測値とシミュレーション結果の比較

カップリング係数 γ の評価は、これまでシミュレーションで行ってきた 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ の組み合わせで行う。ただ実験には 3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池を用いて直流電流－電圧測定する。測定条件は、660nm の LED バイアス光は $1\text{mW}/\text{cm}^2 \sim 298.46\text{mW}/\text{cm}^2$ の範囲で光強度を変化させた。使用するバイアス光はこの 1 種類である。660nm の波長はトップセル・ミドルセル共に吸収をする。バイアス光強度が小さい時はトップセルで全て吸収をしてしまうが、徐々に大きくしていくことでトップセルの厚みの関係上吸収することができない光をミドルセルが吸収し始め、ミドルセルも電流を生成するようになる。このため、ミドルセルが生成する電流量はトップセルが生成する電流量を超えることはない。何故このような測定条件で実験を行うのかというと、今回の実験ではミドルセルとボトムセルのルミネッセンスカップリングを評価するため、トップセルとミドルセル間のルミネッセンスカップリングによる影響をできる限り小さく抑えるためである（もしトップセルの吸収する LED バイアス光を照射してしまうと、トップセルとミドルセル間の電流差が大きくなってしまい、両者の間でルミネッセンスカップリングが生じしてしまうため）。ボトムセルに関しては、ボトムセルに対応する LED バイアス光を照射していないため、常に暗状態となる。ゆえに、このような条件で直流電流－電圧特性を測定すれば電流を生成していないボトムセルに電流律速がかかり、ボトムセルの並列抵抗が大きければ出力電流は $0\text{A}/\text{cm}^2$ となる筈である。しかしこれまで述べてきたように、出力電流 $0\text{A}/\text{cm}^2$ となるのであれば、トップセル・ミドルセルで生成された電流は全て再結合電流となって失われる必要がある。その失われる過程の中の発光再結合による光がボトムセルに届けばボトムセルはその光を吸収するため、出力電流が $0\text{A}/\text{cm}^2$ にならないはずである。実際にそのような結果が得られればルミネッセンスカップリングをこれまでの手法で評価できる。その直流電流－電圧特性の実測値を表しているのが図 5-22 である。

外部バイアス電圧が 0V 以下の領域は、ミドルセルである $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ に電流律速が働いている。これはトップセルとミドルセルの電流生成量を比べるとミドルセルの方が小さいためである。外部バイアス電圧 0.8V 前後で急激に電流が増大しているのはボトムセル Ge のブレークダウンによるものである。外部バイアス電圧 1.6V 付近の領域は、ボトムセルに電流律速が働いている。660nm のバイアス光強度が小さい時は出力電流がほぼ $0\text{A}/\text{cm}^2$ となっており、確かにボトムセルが暗状態であることを示している。しかし 660nm のバイアス光強度を大きくしていくと、徐々にボトムセル領域の出力電流が $0\text{A}/\text{cm}^2$ ではなくなっているのが分かる。この領域の外部バイアス電圧を取ってルミネッセンスカップリングを評価する。

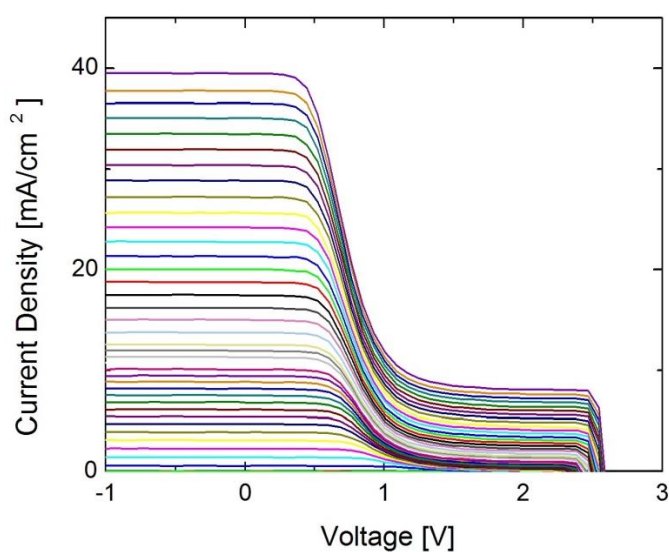


図 5-22 直流電流－電圧特性 測定値

図 5-22 とカップリング係数 γ の定義 $\gamma = J_{out}/J_L$ を使って求めると図 5-23 のようになる。

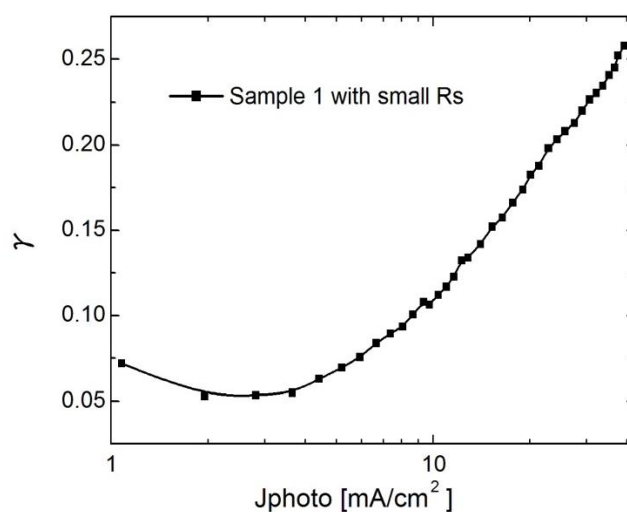


図 5-23 カップリング係数 γ 実測値

バイアス光強度が小さい時（ミドルセルの生成電流量が小さい時に対応）、カップリング係数が大きくなっているのが分かる。これは図 5-10(b)モデルで計算された図 5-17(a)と全く同じ傾向となっている。図 5-17(a)の説明でも述べたように、この領域はボトムセルの並列抵抗による影響である。この傾向は、これまでのモデルである図 5-10(a)では見ることができなかつたものである。今回の測定ではバイアス光強度に限界があるため、図 5-17 でも見た直列抵抗の影響を見ることができなかつた。そこで、測定する太陽電池の外部に直列抵抗をつなぎ、意図的に太陽電池の直列抵抗を大きくしてカップリング係数 γ を計算することで、実測値でも直列抵抗の影響を受けてカップリング係数 γ が減少することを確認する。直列抵抗以外は全て図 5-22 と同様の実験を行う。その測定で得られた直流電流－電圧特性を以下に示す。

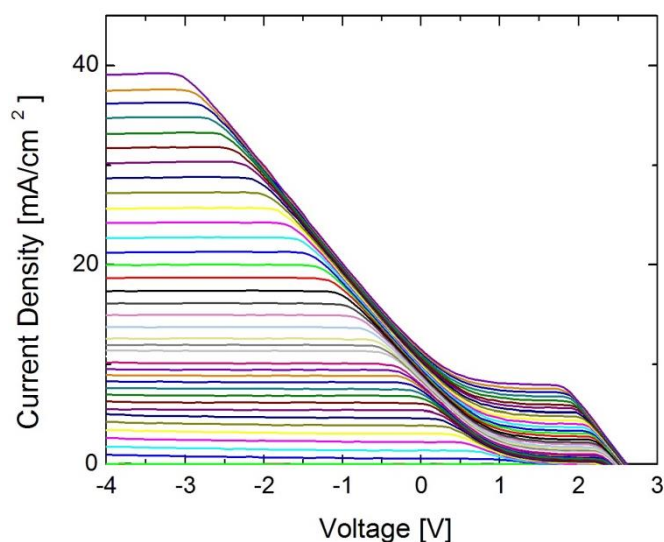


図 5-24 直列抵抗をつなげた直流電流－電圧特性 測定値

図 5-22 と比べて直列抵抗の影響を受けて大きく傾いているのが分かる。この特性からカップリング係数 γ を計算すると、図 5-25 のようになる。

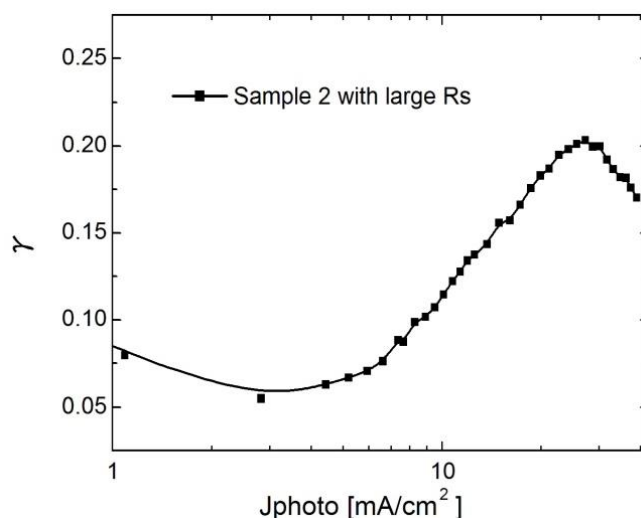


図 5-25 カップリング係数 γ の実測値とシミュレーション値

バイアス光強度が大きい領域でカップリング係数 γ が減少しているのが分かる。これは、図 5-17 の傾向と一致しており、直列抵抗の影響を受けているためである。この傾向は従来モデル図 5-10(a)では再現することができず、改善をした図 5-10(b)でなければ再現することができない。

以上より、実験で計算されるカップリング係数 γ と、改善されたモデルによって計算されたカップリング係数 γ の傾向が非常によく一致を確認することができた。従来モデルでは決して再現することができなかつた傾向を、実験の傾向と一致する形で再現することができたのは、今後ルミネッセンスカップリングを正確に評価していく意味で有益である。

これまでは 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池の組み合わせでシミュレーションを行ってきたが、もう 1 つの組み合わせである $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデムセルの場合はどうなるのかをこれから示す。使用する各種パラメータは表 5-1 に書かれているものである。2 接合タンデム太陽電池 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ セルで比較検討を行った順序で今回も行う。その順序をもう一度示しておく。

I. シミュレーションでの比較

- ① 図 5-10(a)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)
- ② 図 5-10(b)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)

シミュレーションの比較に入る前に、 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ セルの時と同様、直流電流－電圧特性を示す。

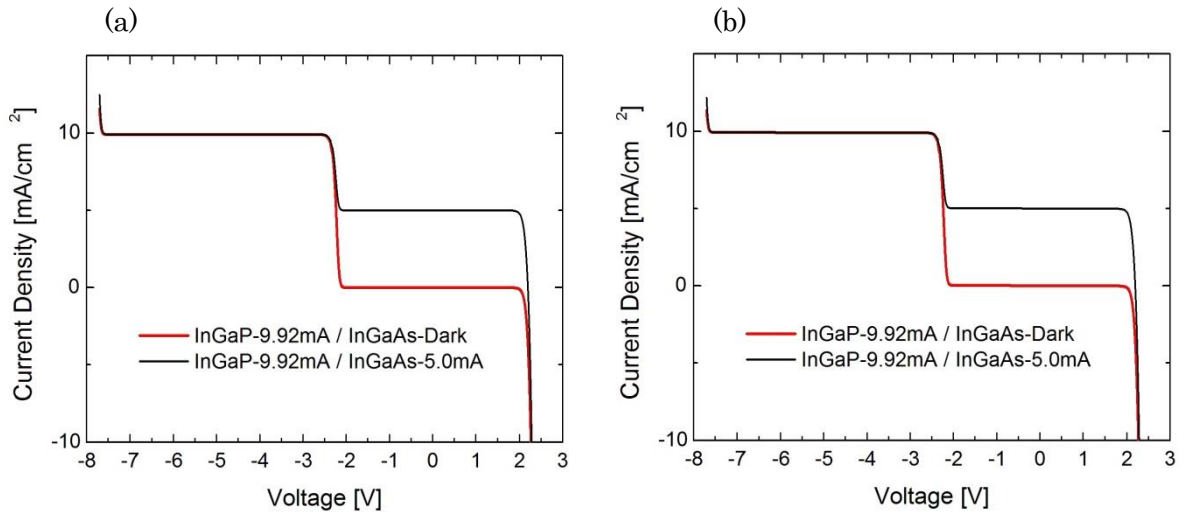


図 5-26 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ セルの直流電流-電圧特性
 (a) 直列/並列抵抗なし (b) 直列/並列抵抗あり

トップセル・ボトムセルの並列抵抗は共に非常に大きいため、あまり変化が見られない。ボトムセルにバイアス光を照射することで変化する領域が、ボトムセルに律速されていることを示している。図 5-26 のような特性を持った 2 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ タンデム太陽電池のカップリング係数 γ を検討する。

I. シミュレーションでの比較

①図 5-10(a)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)

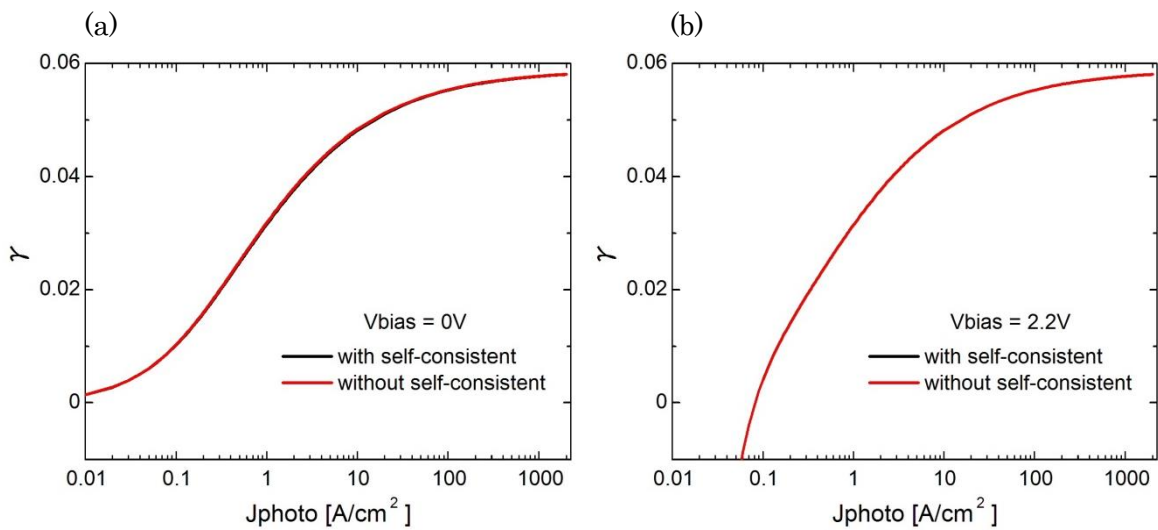


図 5-27 カップリング係数とバイアス光強度との関係
 外部バイアス 0V、 (b) 外部バイアス 2.2V

図 5-27 が、直列・並列抵抗を取り除いたモデルで計算されたカップリング係数 γ のバイアス光強度依存性を表したものになる。 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ の傾向と全く同じであり、自己無撞着に計算をしたカップリング係数 γ の方が、自己無撞着に計算をしていないカップリング係数 γ よりも小さい。その詳細に関しては、図 5-15 での説明に譲る。唯一異なる点としては、カップリング係数 γ の飽和する値である。図 5-15 の説明でも述べたが、この飽和値はトップセルの拡散電流係数と発光再結合電流係数との比でほぼ決定される。図 5-15 の時と同様に、ここで表 5-1 のパラメータからカップリング係数 γ を計算すると以下ようになる。

$$\begin{aligned}\gamma &\cong \frac{J_{rad,0}^{HB}}{J_{diff,0}^{HB} + J_{rad,0}^{HB}} \\ &= \frac{1.07 \times 10^{-27}}{1.71 \times 10^{-26} + 1.07 \times 10^{-27}} \cong 0.059\end{aligned}$$

この値は図 5-27 の飽和値と同程度になっており、妥当である。

I. シミュレーションでの比較

②図 5-10(b)モデルを使用 (自己無撞着な計算を行う/行わない場合の比較)

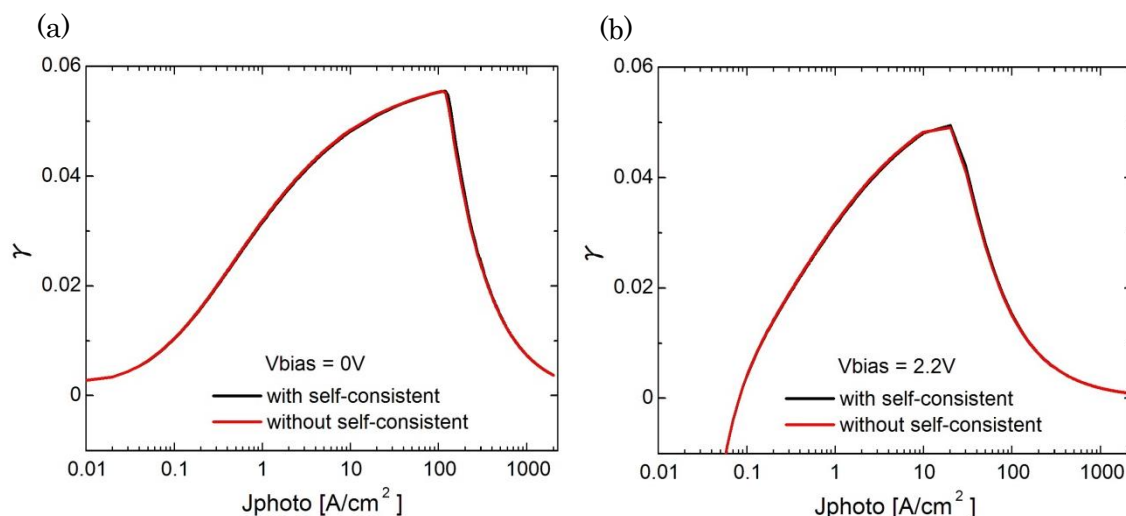


図 5-28 カップリング係数 γ とバイアス光強度との関係
外部バイアス 0V、 (b) 外部バイアス 2.2V

図 5-28 は、直列・並列抵抗を含めた改善されたモデルによるカップリング係数 γ のバイアス光強度依存性を示している。図 5-17 と違い、バイアス光強度が小さい領域での並列抵抗の影響が顕著ではない。これは、ボトムセルとして考えている $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}$ の並列抵抗値が非常に大きいことにより (表 5-1 より 1.0×10^5 と設定)、出力電流 J_{out} に影響を与えることが小さいためである。その他の説明に関しては、全て図 5-17 で既に述べているので省

略する。

以上で、直流電流－電圧特性による多接合タンデム太陽電池の各サブセル間のカップリング係数 γ の検討を終える。結論としては、図 5-10(b)の改善されたモデルと自己無撞着な計算によって、より厳密なカップリング係数 γ を求めることが可能となり、実測値とも非常によい一致をみることができ、有用性を示すことができた。

5-4-4 SR-V 法の応用

本項では、第 3・4 章において多接合タンデム太陽電池の評価・解析の際に使用した我々が提案した新しい測定手法である SR-V 法をルミネッセンスカップリングの評価に応用する。3-3-3 でも述べたが、SR-V 法は EQE 測定の実用と見ることができ（SR-V 法は、測定対象サブセルに照射する AC チョッピングされたモノクロ光の波長を変更しない代わりに、外部バイアス電圧を変化させる、という測定法である）。先ず EQE 測定により、5-3-2 で述べた結果と同様なものが得られることを確認した後、SR-V 法によりルミネッセンスカップリング現象を見る。最後に、これまで詳細に報告されてこなかった不完全吸収とルミネッセンスカップリングの関係について SR-V 法を用いて説明する。

5-3-2 で述べたように、[3]のグループは EQE 測定によりルミネッセンスカップリングを評価している。そこで EQE 測定と SR-V 法の比較のために、先ず我々の 3 接合タンデム太陽電池 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ の EQE 測定を行い、5-3-2 で述べた結果が得られるかを確認する。以下の図が、Ge ボトムセルの EQE 測定の結果である。

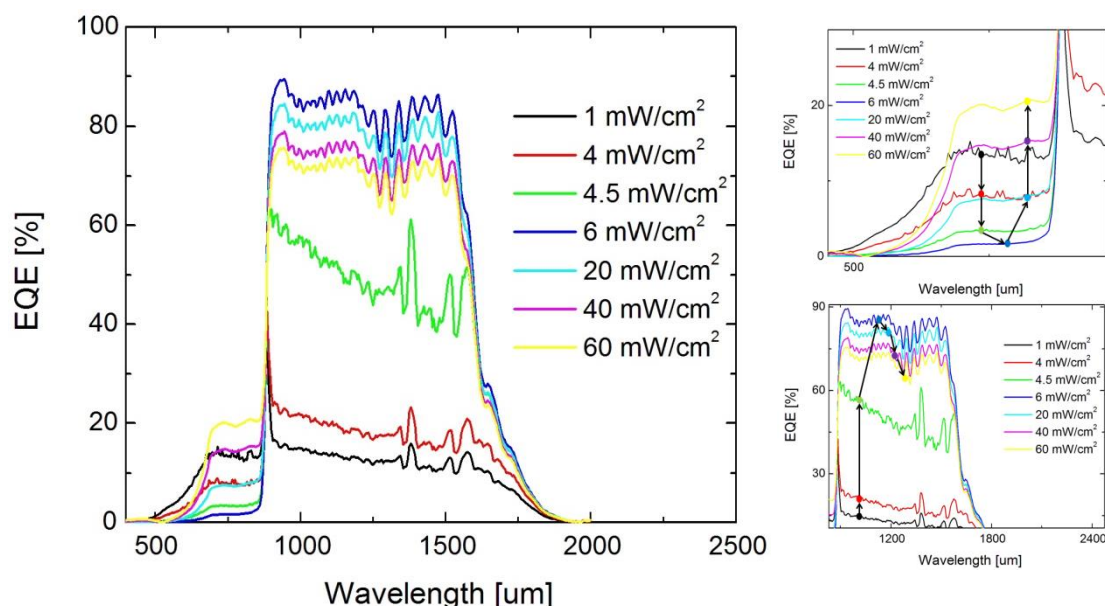


図 5-29 Ge ボトムセル外部量子効率のバイアス光強度依存性

図中に記載されている強度は、ミドルセルへ照射する 660nm の LED バイアス光強度を

表している。全てのグラフは、外部バイアスを $2.0V$ に設定をしている。図を見ても分かるように、 $660nm$ のバイアス光強度を大きくしていくと、EQE 特性に変化が起こる。ミドルセルの吸収波長領域においては、 $6mW/cm^2$ までは信号が弱くなるが、 $6mW/cm^2$ を超えると信号が大きくなる。これは 5-3-2 において説明をした、並列抵抗とルミネッセンスカップリングによるものである。それに対しボトムセルの吸収波長領域においては、逆の過程となっていることが確認できる。以上の結果より、EQE 測定によってルミネッセンスカップリングの現象を確認できた。次に SR-V 法を用いた時、実測値にどのような変化が起こるのかを確認し、その変化をシミュレーションで再現することができるかを検証する。

実験で使用するものは、EQE 測定したサンプルと同じ 3 接合 $In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge$ タンデム太陽電池である。以下、モノクロ光波長を $1200nm$ に設定し、トップセルを通電状態にするために $480nm$ の LED バイアス光を $19.1mW/cm^2$ で常時照射し、 $660nm$ の LED バイアス光強度を変化させたときのボトムセル SR-V 測定の結果である。

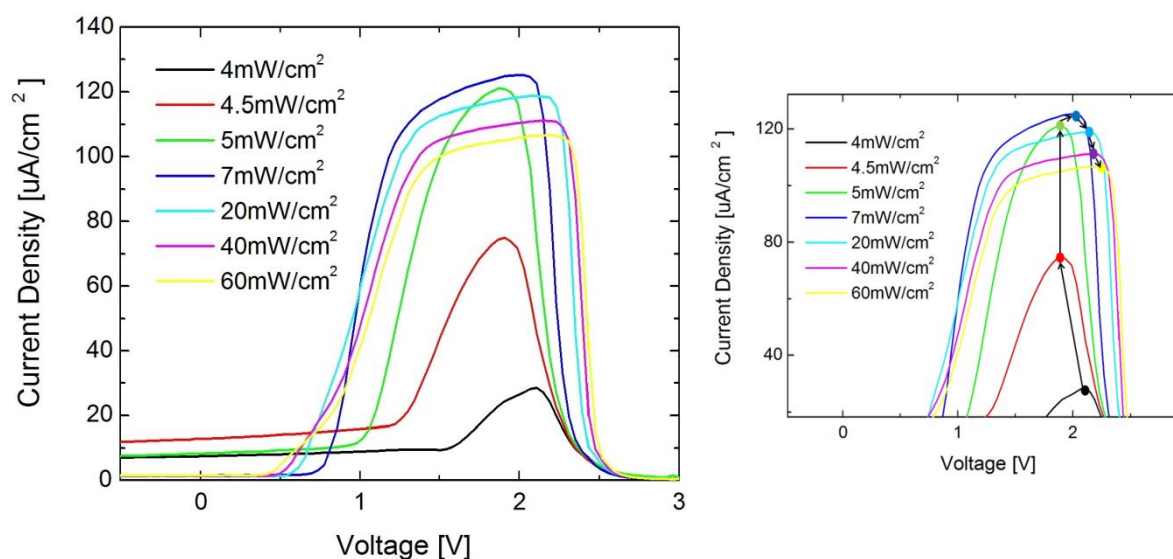






図 5-30 ボトムセル SR-V のバイアス光強度依存性

図中の mW/cm^2 はミドルセルに照射する $660nm$ LED バイアス光の強度である。 $4\sim 7mW/cm^2$ までのバイアス光強度の時は、出力電流が大きくなる傾向にある。これは、図 5-31 を使って説明する。ミドルセルへのバイアス光強度が小さい時(a)、ミドルセルの電流-電圧特性は僅かな電流変化で大きな電圧変化をしてしまう。その結果、ボトムセルにモノクロ光を照射してボトムセルの電流-電圧特性が変化した時(b)、ミドルセルの動作点電圧が最初のポイントから $-\Delta V$ だけシフトしてしまう。外部バイアス電圧は一定に保たなければならないため、その電圧シフト量がボトムセルで打ち消さなければならない。これが原因でボトムセルの動作点電圧も変化し、このシフトにより、本来であれば図中の  に対応

する電流が出力されるところが、に対応する電流しか出力されなくなる。それに対してミドルセルへのバイアス光強度が大きくなると(b)、僅かな電流では電圧シフトがほぼ生じなくなるためミドルセルの電圧シフトをほぼ無視することができる。すると、本来出力される電流と実際に計測されるの値がほぼ等しくなるため、出力電流が大きくなる。以上より、4~7mW/cm² というようにバイアス光強度を大きくしていくと図 5-30 のように出力電流が大きくなる。

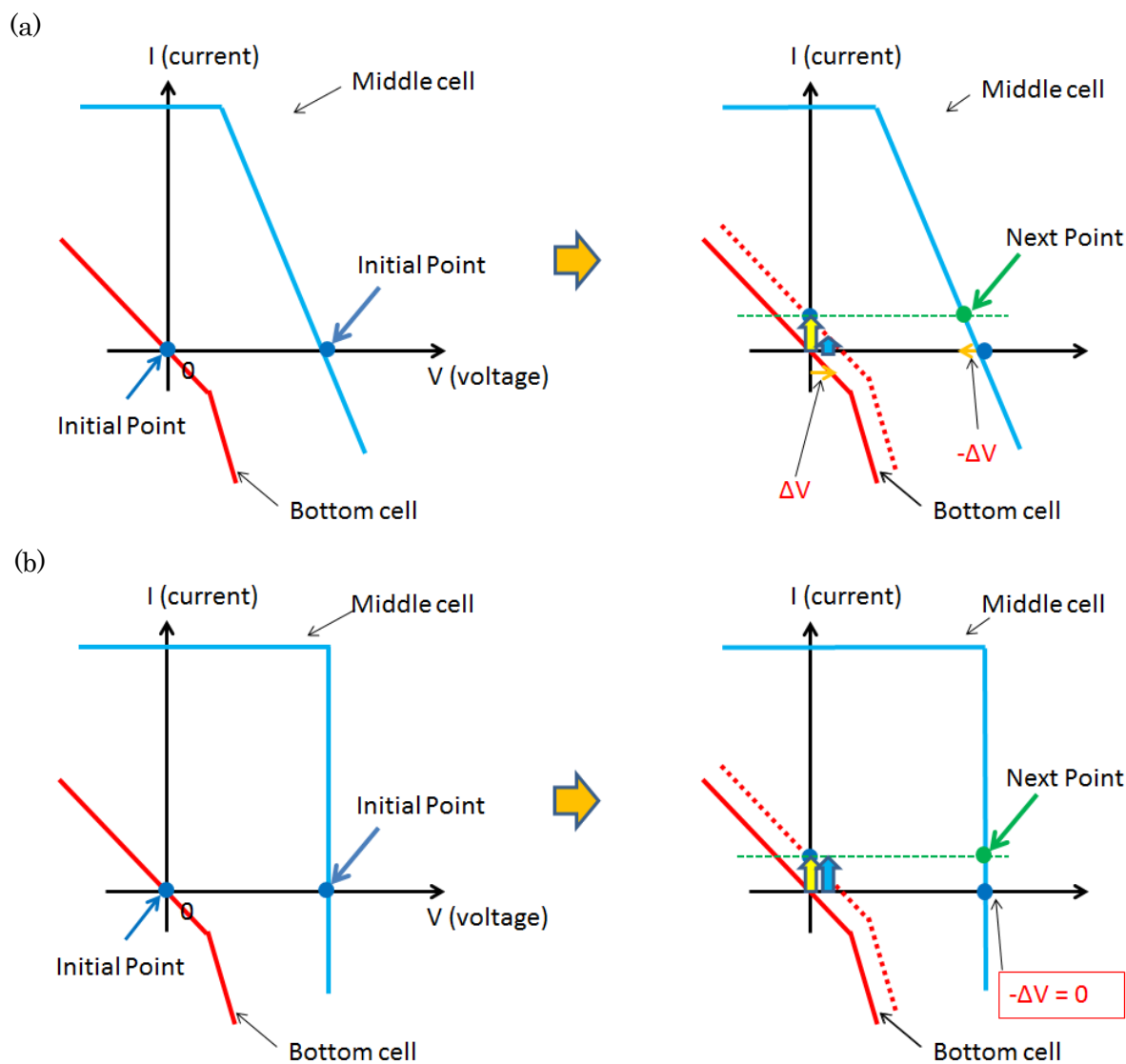


図 5-31 ボトムセル SR-V の出力電流増加の原因

(a) バイアス光強度が小さい時 (b) バイアス光強度が大きい時

左図：ボトムセルへモノクロ光を照射前 右図：ボトムセルへモノクロ光を照射後

しかしバイアス光強度が更に大きくなってしまおうと (7~60mW/cm²)、逆に出力電流が減少

してしまう。これがルミネッセンスカップリングによる影響と考えられる。この原因は、ボトムセルに照射する前のカップリング電流と、モノクロ光を照射した後のカップリング電流に差が出てしまうためと考えられる。この差は、モノクロ光を照射することでボトムセルが電流を生成するため、ミドルセルの再結合電流が減少し、それに応じて発光再結合電流も小さくなるため、モノクロ照射前よりも発光量が減少するためである。

次に、モノクロ光の波長を 1200nm から 780nm に変更し、ミドルセルが吸収する波長をチョッピングして SR-V 測定を行う。LED バイアス光は図 5-30 と同様、480nm を 19.1mW/cm² に設定し、660nm の強度を変化させて測定を行う（つまり、ボトムセルはこの測定時も暗状態である）。その結果を以下に示す。

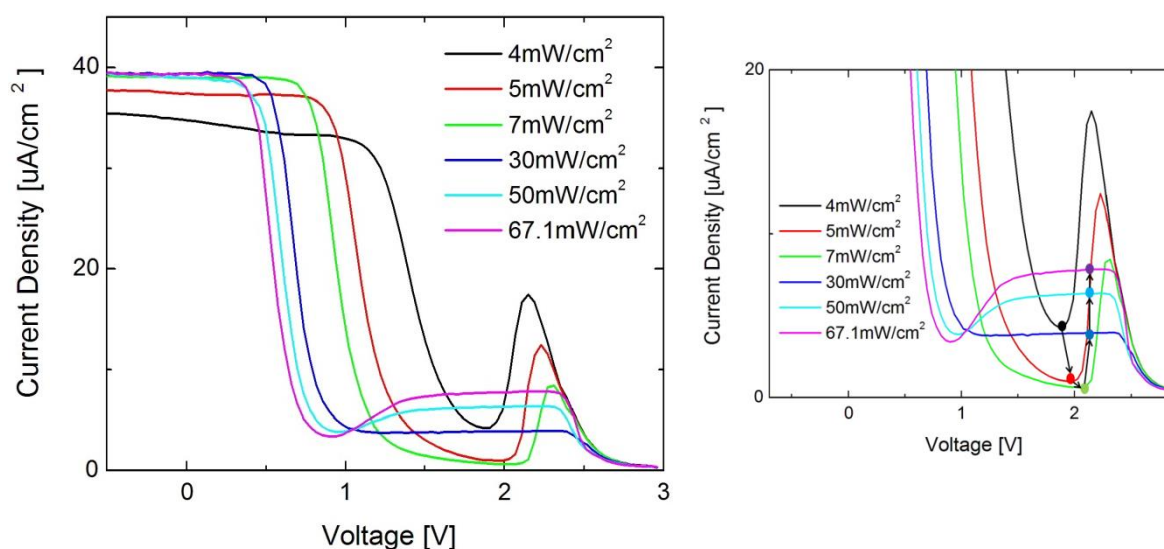


図 5-32 780nm モノクロ光照射による SR-V 特性

図中の mW/cm² は図 5-30 と同様、660nm の LED バイアス光強度である。1V 以下の領域で出力電流がほぼ一定になっているが、これはミドルセルの特性が得られている。これは、ボトムセルの並列抵抗が悪いため、1V 以下ではミドルセルに電流律速がかかっているため、ミドルセルの反応がそのまま表れている。それに対して 1V 以上の領域はボトムセルに電流律速がかかっているため、ボトムセルの反応となる。バイアス光強度が 4~7 mW/cm² の時、2V 付近の出力電流が徐々に小さくなっているのが分かる。これは 5-3-2 項でも説明をしたミドルセルの電圧シフトが小さくなるためである。しかしバイアス光強度を更に大きくした 7~67.1 mW/cm² の領域になると、再び出力電流が大きくなる。これも 5-3-2 項で説明をした、ルミネッセンスカップリングにより現れた信号となる。このように EQE 測定で見られた、ある固定された外部バイアス電圧下での出力電流の変化を SR-V 測定でも同様に実験で計測できることが分かった。それではこの出力電流の影響が本当にルミネッセンスカップリングによるものなのかをシミュレーションで確認をする。シミュレーションでも 3 接合 In_{0.49}Ga_{0.51}P/Ga_{0.99}In_{0.01}As/Ge タンデムセルを想定し、ミドルセルとボトムセルの間で

のルミネッセンスカップリングを計算する。ただし図 5-30 と同様のシミュレーションだけを行い、図 5-32 のシミュレーションは省略する。シミュレーションで使用する各サブセルのダイオードパラメータを以下の表に示す。表 5-2 のパラメータを用いて図 5-30 と同様、ボトムセルの SR-V 特性をシミュレーションした結果を以下に示す。

表 5-2 各サブセルのダイオードパラメータ

$J_{diff,0}$ [A/cm ²]	1.71×10^{-26}	1.16×10^{-19}	7.72×10^{-7}
$J_{nrad,0}$ [A/cm ²]	8.41×10^{-14}	2.03×10^{-10}	7.12×10^{-6}
$J_{rad,0}$ [A/cm ²]	1.07×10^{-27}	1.10×10^{-20}	6.66×10^{-10}
R_s [Ωcm^2]	0.2	0.2	0.2
R_{sh} [Ωcm^2]	2.0×10^5	1.0×10^5	1.0×10^4

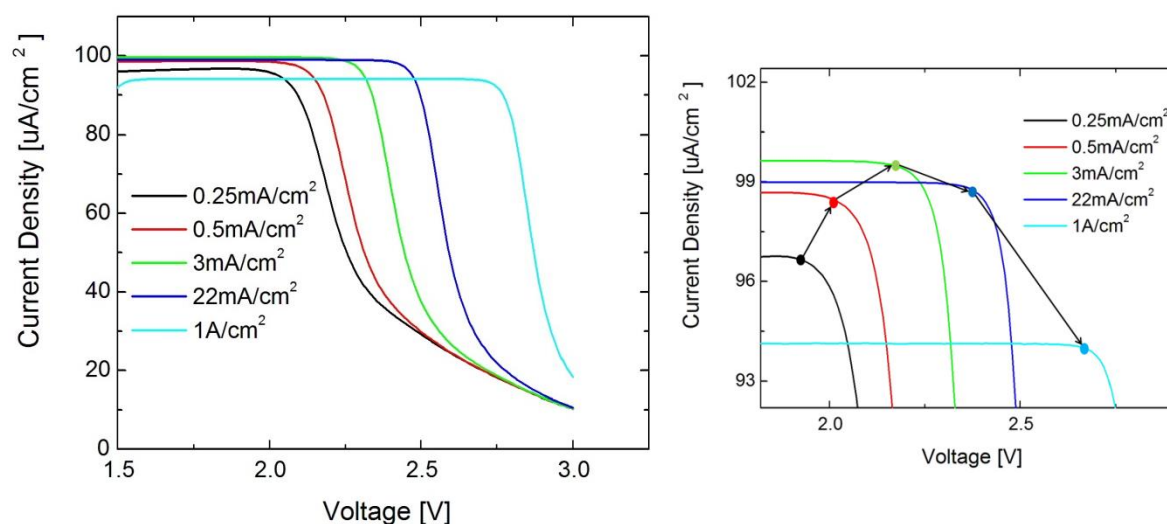


図 5-33 シミュレーションによるボトムセル SR-V 特性

図中の mA/cm² はミドルセルの電流源の値でありバイアス光強度と同意である。この結果よりも分かるように、ミドルセルの電流源の値が 3mA/cm² までは出力電流が増加していくが、それ以上の電流源値になると減少していく。この原因は並列抵抗とルミネッセンスカップリングによるものであることは既に述べた。更に、外部バイアス 2.0V 下での出力電流とミドルセルバイアス光強度の関係を以下の図に示す。図 5-34 で示してあるように、出力電流の増加・減少がはっきりと分かる。このグラフを用いることで、ある外部バイアス下におけるボトムセル測定をする上での最適なバイアス光強度を知ることができる。

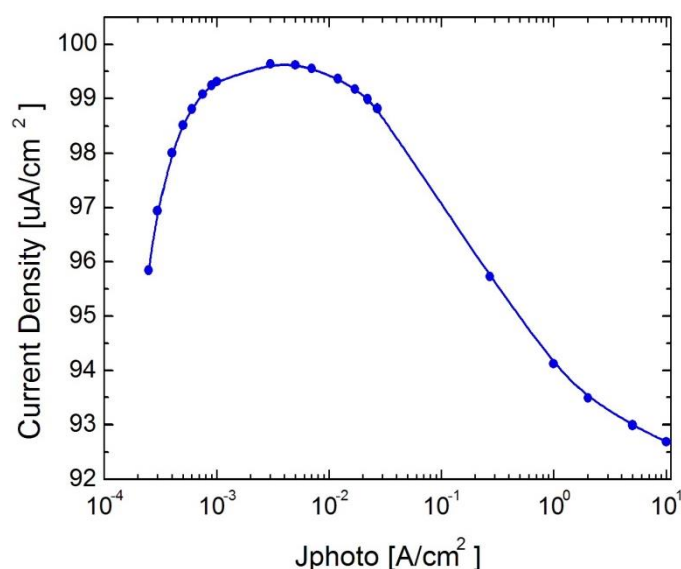


図 5-34 出力電流とバイアス光強度の関係 (外部バイアス 2.0V)

ここまでは、ミドルセルとボトムセルの間でルミネッセンスカップリングが起きているという前提で議論を進めてきた。ボトムセルの電流生成がルミネッセンスカップリングによるものではなく、660nm の LED バイアス光をトップセルとミドルセルで全て吸収しきれず、その余剰分をボトムセルが吸収して電流生成している可能性もある。仮に、不完全吸収でも図 5-33、5-34 と同じ結果になってしまった場合、両者を区別することができなくなる。そこで、この不完全吸収によって SR-V 特性がどのように変化するかを確認する必要がある。以下にその結果を示すが、①ルミネッセンスカップリングが生じておらず、不完全吸収も起きていない、②ルミネッセンスカップリングが生じておらず、不完全吸収は生じている、という二種類の SR-V 特性を示す。不完全吸収のシミュレーションは、図中の mA/cm² で表示されているミドルセルの電流源値の 50%分がボトムセルで生じるとして行った。①の結果が図 5-35 である。ミドルセルへのバイアス光強度を大きくしても出力電流は増加する傾向にしかなく、減少する様子はない。これはミドルセルの電圧シフトの影響が小さくなっていくだけで、更にバイアス光強度を大きくしていくことで、より出力電流が大きくなっていく。②の不完全吸収を模擬した結果が図 5-36 である。図 5-35 の SR-V 特性よりも、出力電流が小さくなっている。これは、ボトムセルが電流生成をすることで、ミドルセルからの電圧シフトの影響を受けやすくなってしまうためである。ただ①と同様にバイアス光強度を大きくしても出力電流が減少することはない。よって、不完全吸収では図 5-33、5-34 のような結果にならないことを示すことができた。これで EQE・SR-V 測定においてボトムセルの出力電流値が変化する原因は並列抵抗とルミネッセンスカップリングによるものであることが明確となった。

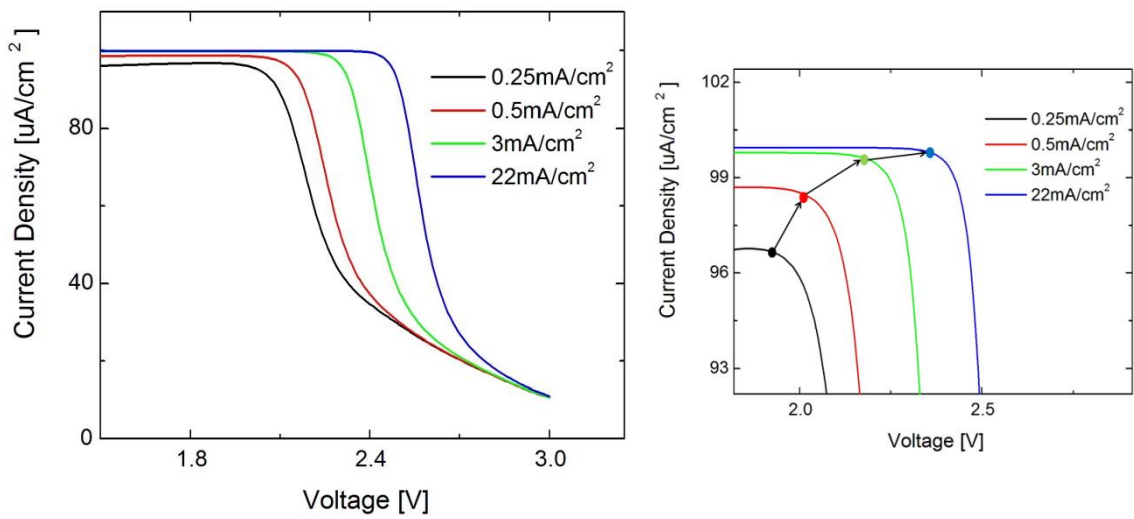


図 5-35 シミュレーションによるボトムセルの SR-V 特性
(ルミネッセンスカップリングなし、不完全吸収なし)

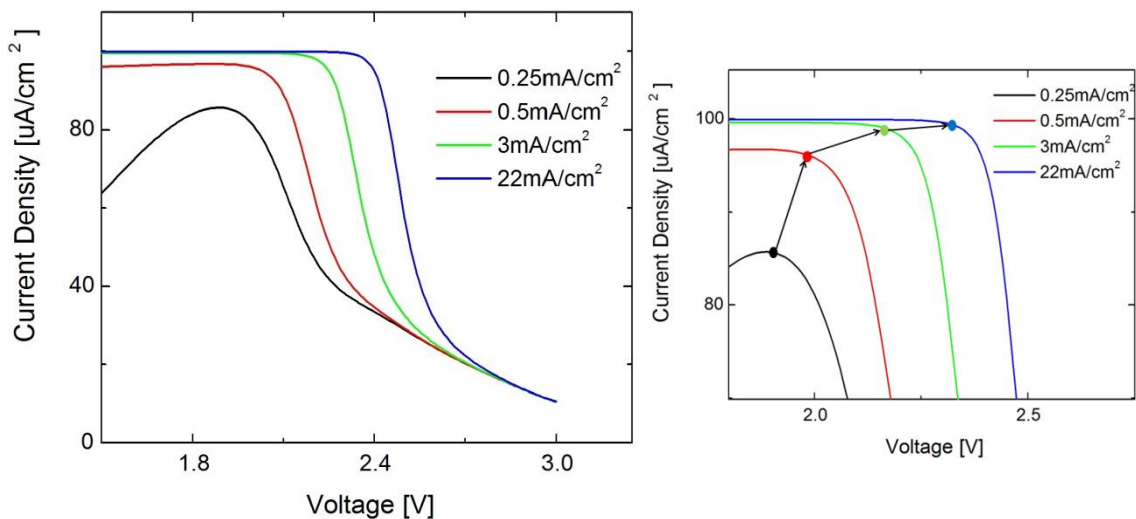


図 5-36 シミュレーションによるボトムセルの SR-V 特性
(ルミネッセンスカップリングなし、不完全吸収あり)

最後に、SR-V 測定が他の測定よりも優れている点を述べる。これまでも見てきたように、測定対象となっているサブセルの最適な条件は、他のサブセルに対して照射するバイアス光強度と外部バイアス電圧の 2 つで決定される。ボトムセルの測定であれば、図 5-30、5-35 にあるようにミドルセルへ照射するバイアス光強度を大きくしていくと出力電流も大きくなるが、それに応じて最適な外部バイアス電圧も変化していることが分かる。この 2 つを同時に決定することができるという点で SR-V 測定は優れている。また出力電流の変化を見ることで、ルミネッセンスカップリングが太陽電池内部で起きているのかも即座に判別できるという点も挙げられる。

5-5 変換効率に与える影響に関する考察

これまで直流電流-電圧測定、EQE 測定、SR-V 測定を用いてルミネッセンスカップリング現象を確認し、その現象を厳密なモデルによって解析してきた。ルミネッセンスカップリングが顕著な多接合タンデム太陽電池の場合、下層のサブセルが予期していた電流よりも大きくなることが予想される（予期していた電流とは、通常 AM1.5 下での入射光により生成される電流量のこと）。この影響により変換効率も僅かに増加するはずである。本節では、そのルミネッセンスカップリングが太陽電池の変換効率にどのような影響を与えるのかをシミュレーションによって計算し、ルミネッセンスカップリングを考慮せずに計算される変換効率とどの程度違いがあるかを調べる。

3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池を用いる。パラメータは以下の表に示す。これらパラメータがどのようにして算出されたかは付録に示す。

表 5-3 各サブセルのダイオードパラメータ

$J_{diff,0} [A/cm^2]$	1.71×10^{-26}	1.16×10^{-19}	7.72×10^{-7}
$J_{nrad,0} [A/cm^2]$	8.41×10^{-14}	2.03×10^{-10}	7.12×10^{-6}
$J_{rad,0} [A/cm^2]$	1.07×10^{-27}	1.10×10^{-20}	6.66×10^{-10}
$R_s [\Omega cm^2]$	1.0×10^{-4}	1.0×10^{-4}	1.0×10^{-4}
$R_{sh} [\Omega cm^2]$	2.0×10^5	1.0×10^5	1.0×10^4
$J_{photo} [mA/cm^2]$	14.0	12.0	16.1

通常はボトムセルが一番大きな電流を生成するため、ミドルセル・ボトムセル間ではルミネッセンスカップリングが生じない。そこで今回のシミュレーションでは、トップセルとミドルセル間でのルミネッセンスカップリングを考えて計算を行う。以下、その結果を示す。

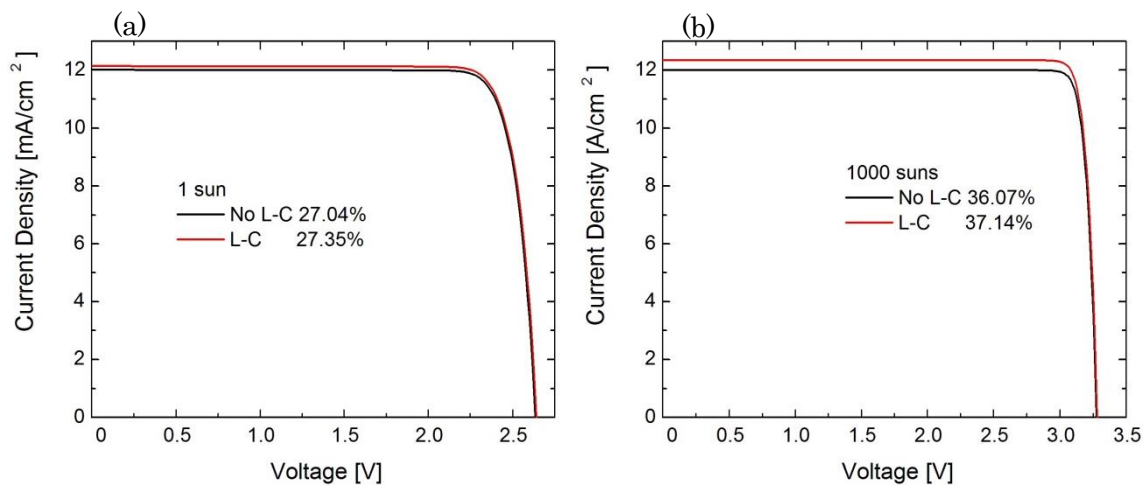


図 5-37 ルミネッセンスカップリング (L-C) が生じている場合/生じていない場合^[9]
 (a) 1sun、(b)1000suns での直流電流-電圧特性

5-4 節までのシミュレーションでは、発光再結合電流の値がそのまま下層のサブセルでのルミネッセンスカップリング電流になると仮定して計算をしてきた（発光再結合電流が 1mA/cm^2 であれば、ルミネッセンスカップリング電流も 1mA/cm^2 になる）。しかし図 5-37 の結果は、発光再結合電流値の半分の値がルミネッセンスカップリング電流になるとして計算をした。1sun 下でのルミネッセンスカップリングの場合、短絡電流の増加は 0.12mA/cm^2 でしかない。これは表 5-1 にあるように、トップセルとミドルセル間での電流差が 2mA/cm^2 しかないため、殆どルミネッセンスカップリングが生じないためである。それでも変換効率はルミネッセンスカップリングが生じていない時よりも 0.31% 増加する。それに対して 1000 倍に集光して計算すると、短絡電流は 345mA/cm^2 増加する。これは集光動作をさせることによって発光再結合電流もそれに応じて増加するためである。この状態で変換効率の比較をすると、ルミネッセンスカップリングが生じていない時よりも 1% 以上増加していることになる。つまり、集光動作をさせた時に測定する変換効率は、ルミネッセンスカップリングの影響を大きく受けていることが分かる。この結果は、多接合タンデム太陽電池の変換効率を標準化する際、ルミネッセンスカップリングを考慮するか、または考慮しないかで大きく変わってしまうことを示している。更に、このルミネッセンスカップリング現象を積極的に利用してサブセル間での短絡電流差を大きくするような太陽電池構造にすることで、更なる最適化を図ることができる可能性を示している。

参考文献

- [1] C. Baur, M. Hermle, F. Dimroth, and A. W. Bett, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 192109 (2007).
- [2] M. Z. Shvarts, M. A. Mintairov, V. M. Emelyanov, V. V. Evstropov, V. M. Lantratov, and N. Kh. Timoshina, *AIP Conference Proceedings* **1556**, 147 (2013).
- [3] Jing-Jing Li, S. H. Lim, C. R. Allen, D. Ding, and Yong-Hang Zhang, *IEEE Journal of Photovoltaics*, vol.1, No.2, 225 (2011).
- [4] Uwe Rau, *Phys. Rev. B* **76**, 085303 (2007).
- [5] M. A. Steiner and J. F. Geisz, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 251106 (2012).
- [6] J. Nelson, *The Physics of Solar Cells* (Imperial College, London, 2003).
- [7] S. M. Sze, *Physics of Semiconductor Devices* (Wiley Interscience, New York, 1969).
- [8] M. S. Shur, *Physics of Semiconductor Devices* (Prentice Hall, New Jersey, 1990).
- [9] T. Sogabe, A. Ogura, Chao-Yu Hung, V. Evstropov, M. Mintairov, M. Shvarts, and Y. Okada, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 263907 (2013).

第 6 章

結論

第6章 結論

本研究は多接合タンデム太陽電池の更なる変換効率向上のために、各サブセルの評価・解析として新しい手法であるスペクトル感度・電圧測定 (SR-V 測定) と自己無撞着なアルゴリズムによるフィッティングを提案した。更に、各サブセル間で生じるルミネッセンスカップリング現象について厳密な計算を行い、太陽電池の変換効率に与える影響について検証した。本研究によって得られた主な成果を以下にまとめる。

(1) SR-V 測定の考案・各サブセルの電気パラメータの抽出

多接合タンデム太陽電池の新しい測定方法として SR-V 法を考案し、その原理について解説した。測定データと自己無撞着なアルゴリズムを用いてフィッティングを行うことにより、これまで抽出が困難とされていた各サブセルの電気パラメータを全て抽出することが可能であることを原理的に示した。この手法を 2 接合 $\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池に応用し、実際に電気パラメータ抽出が行えることを示した。

(2) ルミネッセンスカップリング現象の厳密な解析と変換効率に与える影響の評価

従来では計算が複雑になる関係上、太陽電池の等価回路に含まれている直列・並列抵抗、更には自己無撞着な計算を無視して計算が行われてきたが、それらの影響を全て含んだ状態での厳密な計算をすることを試みた。その結果、自己無撞着な計算をした場合としていない場合とで、ルミネッセンスカップリングを評価するカップリング係数の違いを示すことができた。更に、実験で得られるカップリング係数は直列・並列抵抗の影響を受けることを示し、計算結果と実測値の傾向が一致することを示した。

また 3 接合 $\text{In}_{0.49}\text{Ga}_{0.51}\text{P}/\text{Ga}_{0.99}\text{In}_{0.01}\text{As}/\text{Ge}$ タンデム太陽電池に対して、この厳密な計算モデルを適用した時に、変換効率がどれだけ影響を受けるかの試算も行った。1sun 下ではルミネッセンスカップリングの影響が 0.3%程度と小さかったが、1000suns 下では 1%以上の影響を与えることが分かった。

ルミネッセンスカップリングによって変換効率が変わるという多接合セルの特徴を積極的に利用して、サブセル間での短絡電流差を意図的に大きくすることで太陽電池構造をより最適化することができる可能性を示した。

以上の結果は、多接合タンデム太陽電池の更なる変換効率の向上のために重要な知見を与えると考えられる。今後、各サブセルの電気パラメータ抽出に関しては、直流電流-電圧特性からも可能であると考えられるため、そのデータを用いてフィッティングが可能であるか検証できるかが次のステップである。また、フィッティングで得られた電気パラメータを用いて実デバイス内でルミネッセンスカップリングがどのくらい起きているのかを定量

的に算出することで、各セルの発電状態を求めることができる。

付録 1. 抽出パラメータ比較用

Parameters / Cell	Ga _{0.99} In _{0.01} As	Ge
n_i ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ⁻³]	2.00×10^6	2.00×10^{13}
μ_n ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ² /V-s]	8500	3900
μ_p ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ² /V-s]	400	1900
D_n ^{1, 5} [cm ² /s]	219.9	100.9
D_p ^{1, 5} [cm ² /s]	10.4	49.2
τ_n ^{1, 2, 3, 4, 6} [s]	1.00×10^{-8}	2.00×10^{-6}
τ_p ^{1, 2, 3, 4, 6} [s]	1.00×10^{-8}	2.00×10^{-6}
L_n ^{1, 5} [cm]	1.40×10^{-3}	1.40×10^{-2}
L_p ^{1, 5} [cm]	3.20×10^{-4}	9.90×10^{-3}
N_A [cm ⁻³]	1.00×10^{16}	1.00×10^{18}
N_D [cm ⁻³]	1.00×10^{16}	1.00×10^{18}
W_n ^{1, 5} [cm]	3.18×10^{-6}	2.23×10^{-6}
W_p ^{1, 5} [cm]	3.18×10^{-6}	2.23×10^{-6}
ϵ/ϵ_0 ^{1, 2, 3, 4, 6}	13.1	16
$J_{diff,0}$ ^{1, 5} [A/cm ²]	1.16×10^{-18}	7.72×10^{-7}
$J_{nrad,0}$ ^{1, 5} [A/cm ²]	1.85×10^{-11}	7.12×10^{-6}

$$W_{Dp} = \sqrt{\frac{2\epsilon_s \psi_{bi}}{q} \frac{N_D}{N_A(N_A+N_D)}} \quad 1, 5$$

$$W_{Dn} = \sqrt{\frac{2\epsilon_s \psi_{bi}}{q} \frac{N_A}{N_D(N_A+N_D)}} \quad 1, 5$$

$$\psi_{bi} = \frac{kT}{q} \ln\left(\frac{N_D N_A}{n_i^2}\right) \quad 1, 5$$

$$D_{p,n} = \frac{kT}{q} \mu_{p,n} \quad 1, 5$$

$$L_{p,n} = \sqrt{D_{p,n} \tau_{p,n}} \quad 1, 5$$

$$\tau_{p,n} = \frac{1}{BN_{A,D}} \quad 1, 5$$

$$J_{diff,0} = qn_i^2 \left(\frac{D_n}{N_A L_n} + \frac{D_p}{N_D L_p} \right) \quad 1, 5$$

$$J_{nrad,0} = qn_i \frac{W_n + W_p}{\sqrt{\tau_n \tau_p}} \quad 1, 5$$

n_i : *intrinsic carrier concentration*
 $\mu_{n,p}$: *Electron or Hole mobility*
 $D_{n,p}$: *Diffusion coefficient for Electron or Hole*
 $\tau_{n,p}$: *Carrier life time for Electron or Hole*
 $L_{n,p}$: *Diffusion length for Electron or Hole*
 $N_{A,D}$: *Donar or Acceptor impurity concentration*
 $W_{n,p}$: *Depletion width in N or P type material*
 ϵ/ϵ_0 : *Relative permittivity*
 $J_{dif,0}$: *Diffusion current coefficient*
 $J_{rad,0}$: *Non radiative recombination current coefficient*
 ψ_{bi} : *Built – in potential at equilibrium*

参考文献

1. S. M. Sze, Physics of Semiconductor Devices (Wiley Interscience, New York, 1969).
2. Otfried Madelung, Semiconductors: Data Handbook (Springer).
3. <http://homepages.rpi.edu/~schubert/Educational-resources/Materials-Semiconductors-Silicon-Germanium-&-GaAs.pdf>
4. <http://homepages.rpi.edu/~schubert/Educational-resources/Materials-Semiconductors-III-V-phosphides.pdf>
5. J. Nelson, The Physics of Solar Cells (Imperial College, London, 2003).
6. <http://www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/Semicond/>

付録 2. χ^2 分布

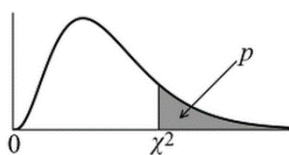


表 4-12 χ^2 値、確率、自由度の関係

自由度	確率 p	0.99	0.985	0.975	0.025	0.015	0.01	0.005
	0.995							
1	0.00004	0.00016	0.00035	0.00098	5.02389	5.91647	6.63490	7.87944
2	0.01003	0.02010	0.03023	0.05064	7.37776	8.39941	9.21034	10.59663
3	0.07172	0.11483	0.15157	0.21580	9.34840	10.46503	11.34487	12.83816
4	0.20699	0.29711	0.36816	0.48442	11.14329	12.33910	13.27670	14.86026
5	0.41174	0.55430	0.66178	0.83121	12.83250	14.09779	15.08627	16.74960
6	0.67573	0.87209	1.01596	1.23734	14.44938	15.77739	16.81189	18.54758
7	0.98926	1.23904	1.41843	1.68987	16.01276	17.39843	18.47531	20.27774
8	1.34441	1.64650	1.86027	2.17973	17.53455	18.97387	20.09024	21.95495
9	1.73493	2.08790	2.33486	2.70039	19.02277	20.51250	21.66599	23.58935
10	2.15586	2.55821	2.83719	3.24697	20.48318	22.02060	23.20925	25.18818
11	2.60322	3.05348	3.36338	3.81575	21.92005	23.50285	24.72497	26.75685
12	3.07382	3.57057	3.91037	4.40379	23.33666	24.96283	26.21697	28.29952
13	3.56503	4.10692	4.47566	5.00875	24.73560	26.40338	27.68825	29.81947
14	4.07467	4.66043	5.05724	5.62873	26.11895	27.82678	29.14124	31.31935
15	4.60092	5.22935	5.65342	6.26214	27.48839	29.23488	30.57791	32.80132
16	5.14221	5.81221	6.26280	6.90766	28.84535	30.62924	31.99993	34.26719
17	5.69722	6.40776	6.88415	7.56419	30.19101	32.01116	33.40866	35.71847
18	6.26480	7.01491	7.51646	8.23075	31.52638	33.38175	34.80531	37.15645
19	6.84397	7.63273	8.15884	8.90652	32.85233	34.74196	36.19087	38.58226
20	7.43384	8.26040	8.81050	9.59078	34.16961	36.09262	37.56623	39.99685
140	100.6548	104.0344	106.1901	109.1368	174.6478	178.7496	181.8403	186.8468

付録 3. ルミネッセンスカップリングの評価用パラメータ

Parameters / Cell	In _{0.49} Ga _{0.51} P	In _{0.01} Ga _{0.99} As	Ge
n_i ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ⁻³]	1.0×10^3	2.00×10^6	2.00×10^{13}
μ_n ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ² /V·s]	2530	8500	3900
μ_p ^{1, 2, 3, 4, 6} [cm ² /V·s]	162	400	1900
D_n ^{1, 5} [cm ² /s]	65.5	219.9	100.9
D_p ^{1, 5} [cm ² /s]	4.19	10.4	49.2
τ_n ^{1, 2, 3, 4, 6} [s]	5.15×10^{-7}	1.00×10^{-8}	2.00×10^{-6}
τ_p ^{1, 2, 3, 4, 6} [s]	5.15×10^{-7}	1.00×10^{-8}	2.00×10^{-6}
L_n ^{1, 5} [cm]	5.81×10^{-3}	1.40×10^{-3}	1.40×10^{-2}
L_p ^{1, 5} [cm]	1.47×10^{-3}	3.20×10^{-4}	9.90×10^{-3}
N_A [cm ⁻³]	1.00×10^{18}	1.00×10^{18}	1.00×10^{18}
N_D [cm ⁻³]	1.00×10^{18}	1.00×10^{18}	1.00×10^{18}
W_n ^{1, 5} [cm]	2.89×10^{-6}	3.18×10^{-6}	2.23×10^{-6}
W_p ^{1, 5} [cm]	2.89×10^{-6}	3.18×10^{-6}	2.23×10^{-6}
$\varepsilon/\varepsilon_0$ ^{1, 2, 3, 4, 6}	11.8	13.1	16
B ^{1, 2, 3, 4, 5, 6} [cm ³ /s]	————	1.00×10^{-10}	5.00×10^{-13}
E_m ^{1, 6} [V/cm]	7.55×10^5	6.5×10^5	1.84×10^5
V_{BD} [V]	3.73	3.06	0.3
$J_{dif,0}$ ^{1, 5} [A/cm ²]	1.71×10^{-26}	1.16×10^{-19}	7.72×10^{-7}
$J_{nrad,0}$ ^{1, 5} [A/cm ²]	8.41×10^{-14}	2.03×10^{-10}	7.12×10^{-6}
$J_{luminescent,0}$ ⁷ [A/cm ²] integration range : $\lambda_1 \sim \lambda_2$ Tripple InGaP/InGaAs/Ge	1.07×10^{-27} 380~730nm	1.10×10^{-20} 680~980nm	6.66×10^{-10} 980~2100nm
J_{sc} [A/cm ²] Tripple InGaP/InGaAs/Ge	9.92	12.0	16.1

$$W_{Dp} = \sqrt{\frac{2\varepsilon_s \psi_{bi}}{q} \frac{N_D}{N_A(N_A+N_D)}} \quad 1,5$$

$$W_{Dn} = \sqrt{\frac{2\varepsilon_s \psi_{bi}}{q} \frac{N_A}{N_D(N_A+N_D)}} \quad 1,5$$

$$\psi_{bi} = \frac{kT}{q} \ln\left(\frac{N_D N_A}{n_i^2}\right) \quad 1,5$$

$$D_{p,n} = \frac{kT}{q} \mu_{p,n} \quad 1,5$$

$$L_{p,n} = \sqrt{D_{p,n} \tau_{p,n}} \quad 1,5$$

$$\tau_{p,n} = \frac{1}{BN_{A,D}} \quad 1,5$$

$$J_{diff,0} = qn_i^2 \left(\frac{D_n}{N_A L_n} + \frac{D_p}{N_D L_p} \right) \quad 1,5$$

$$J_{nrad,0} = qn_i \frac{W_n + W_p}{\sqrt{\tau_n \tau_p}} \quad 1,5$$

$$J_{luminescent,0} = q \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} EQE(\lambda) \phi_{bb}(\lambda) d\lambda \quad 7$$

$$V_{BD} = \frac{\varepsilon_s E_m^2}{2qN} \quad 1$$

Vegard's law

$$\ln(x)Ga(1-x)P = GaP + (\ln P - GaP)x$$

Planck radiation fomula

$$\phi_{bb}(\lambda) = \frac{2\pi c}{\lambda^4} \frac{1}{\exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) - 1} \quad T = 300K$$

n_i : intrinsic carrier concentration
 $\mu_{n,p}$: Electron or Hole mobility
 $D_{n,p}$: Diffusion coefficient for Electron or Hole
 $\tau_{n,p}$: Carrier life time for Electron or Hole
 $L_{n,p}$: Diffusion length for Electron or Hole
 $N_{A,D}$: Donor or Acceptor impurity concentration
 $W_{n,p}$: Depletion width in N or P type material
 ϵ/ϵ_0 : Relative permittivity
 B : Radiative recombination coefficient
 E_m : Break down field
 $J_{dif,0}$: Diffusion current coefficient
 $J_{nr,0}$: Non radiative recombination current coefficient
 $J_{lum,0}$: Luminescent (radiative) recombination current coefficient
 J_{sc} : Short circuit current density
 ψ_{bi} : Built – in potential at equilibrium
 V_{BD} : Breakdown voltage

参考文献

1. S. M. Sze, Physics of Semiconductor Devices (Wiley Interscience, New York, 1969).
2. Otfried Madelung, Semiconductors: Data Handbook (Springer).
3. <http://homepages.rpi.edu/~schubert/Educational-resources/Materials-Semiconductors-Silicon-Germanium-&-GaAs.pdf>
4. <http://homepages.rpi.edu/~schubert/Educational-resources/Materials-Semiconductors-III-V-phosphides.pdf>
5. J. Nelson, The Physics of Solar Cells (Imperial College, London, 2003).
6. <http://www.ioffe.rssi.ru/SVA/NSM/Semicond/>
7. Uwe Rau, Phys. Rev. B **76**, 085303(2007)

業績目録

発表論文

- 1) Y. Okada, K. Yoshida, Y. Shoji, A. Ogura, P. Garcia-Linares, A. Marti, and A. Luque, “The effect of concentration on the performance of quantum dot intermediate-band solar cells”, AIP Conference Proceedings 1477, pp. 10-13 (2012); doi: 10.1063/1.4753822.
- 2) T. Sogabe, A. Ogura, M. Ohba, and Y. Okada, “Self-consistent electrical parameters extraction in bias voltage dependent spectral response measurements for III-V multi-junction solar cells”, Prog. Photovoltaics: Res. Appl. (2013); doi: 10.1002/pip2392 (2013).
- 3) A. Ogura, T. Sogabe, M. Ohba, and Y. Okada, “Extraction of electrical parameters in multi-junction solar cells from voltage dependent spectral response without light bias”, accepted in JJAP, 2014.
- 4) T. Sogabe, A. Ogura, C.-Y. Hung, V. Evstropov, M. Mintairov, M. Shvarts, and Y. Okada, “Experimental characterization and self-consistent modeling of luminescence coupling effect in III-V multijunction solar cells”, Appl. Phys. Lett. **103**, 263907 (2013).
- 5) A. Ogura, T. Sogabe, C.-Y. Hung, and Y. Okada, “Extraction of electrical parameters in *triple*-junction tandem solar cells with voltage dependent spectral response (SR-V) without continuum light bias”, to be submitted.
- 6) A. Ogura, T. Sogabe, C.-Y. Hung, and Y. Okada, “Luminescence coupling effect for conversion efficiency in multi-junction solar cells”, to be submitted.

国際会議

- 1) A. Ogura, T. Morioka, and Y. Okada, “Modeling of GaAs p-i-n solar cells on dark and concentration characteristics by using a modified equivalent circuit”, 7th International Conference on Concentrating Photovoltaic Systems (CPV-7), Las Vegas (April, 2011).
- 2) A. Ogura, T. Morioka, P. Garcia-Linares, E. Hernandez, I. Ramiro, I. Artacho, E. Antolin, A. Marti, A. Luque, M. Yamaguchi, and Y. Okada, “Modeling of Quantum Dot Solar Cells for Concentrator PV Applications”, 37th IEEE Photovoltaic Specialists Conference, Seattle (June, 2011).
- 3) Y. Okada, P. García-Linares, A. Luque, A. Martí, A. Ogura, Y. Shoji, and K. Yoshida, “Effect of Concentration on the Performance of Quantum Dot Intermediate-Band Solar Cells”, 8th International Conference on Concentrating Photovoltaic Systems (CPV-8), Toledo (April, 2012).
- 4) A. Ogura, T. Sogabe, M. Ohba, and Y. Okada, “Self-consistent fitting of electrical parameters for InGaAs/Ge dual junction solar cells from bias-dependent spectral response”, 9th International Conference on Concentrating Photovoltaic Systems (CPV-9), Miyazaki (April, 2013).

- 5) A. Ogura, T. Sogabe, M. Ohba, and Y. Okada, “Electrical parameters extraction from voltage dependent spectral response in multi-junction solar cells without bias light”, 23rd Photovoltaic Science and Engineering Conference, Taipei (October, 2013).
- 6) T. Sogabe, T. Kaizu, A. Ogura, S. Tomic, Y. Okada, “GaAs/AlGaAs quantum nanodisks in quantum wire array for intermediate band solar cell (IBSC)”, The 6th International Symposium on Innovative Solar Cells, Tokyo Tech Front (January, 2014).
- 7) A. Ogura, T. Sogabe, C.-Y. Hung, and Y. Okada, “Characterization of *triple*-junction tandem solar cells with voltage dependent spectral response (SR-V) without light bias”, 10th International Conference on Concentrating Photovoltaic Systems (CPV-10), Albuquerque (April, 2014).

ポスター発表予定

特許

「多接合タンデム太陽電池の各サブセルの電気特性解析に関する特許（仮名）」申請中

その他

- 1) 日経エレクトロニクス 2013年7月8日
- 2) 日経産業新聞 2013年7月1日

謝辞

本研究を遂行するに当たりまして、多くの方々のご指導とご協力を賜りましたことに、皆様に深く感謝致します。充実した研究設備・環境を整えてくださったことはもちろんのことながら、研究活動、生活の両面において多くのご指導をしてくださった岡田至崇教授に深く感謝致します。岡田先生には、修士課程で学んだことと全く違う分野へ飛び込む機会を私に与えてくださり、右も左も分からないような私がどのような状況に置かれても信じ見守り、最後まで励まし続けてくださいました。また、実験装置の使用法、半導体に関する知識、研究活動において必要な姿勢など、様々な点で細かく丁寧にご指導してくださった曾我部東馬特任助教に対して深く感謝いたします。曾我部氏には、私を信頼して様々な場所へ連れて行ってくださるなど、本当に多くのことを学ばせていただきました。岡田先生、曾我部氏のお二人より、研究者、そしてまた教育者として重要な多くのことを学ばせていただきました。重ねて厚く御礼申し上げます。

博士論文審査の際には、ご多忙な所で副査を引き受けてくださり、的確な助言をいただきました鈴木宏正教授、中野義昭教授、山下真司教授、杉山正和准教授に深く感謝致します。

多接合タンデム太陽電池の評価装置の開発や展示会などでご協力いただいた、タカノ株式会社、とりわけ小田切章常務取締役、斉藤靖氏、中村幸仁氏、武沢幸喜氏に対して深く感謝致します。

大場光芳協力研究員には、多接合タンデム太陽電池の作製や実験方法に関するご指導など様々ご協力していただきことに深く感謝致します。

Nazmul Ahsan 特任准教授、星井拓也助教、宮下直也特任助教、玉置亮研究員、Daniel Farrell 研究員、庄司靖研究員、Efrain Tamayo 氏には、日頃より多くの議論を交わして頂き、実験結果の理解を深めることができました。産業技術総合研究所の大島隆治氏、神戸大学の海津利行助教、筑波大学の Muhammad Monirul Islam 研究員、筑波大学の吉田勝尚研究員には東京大学在籍時に実験装置の使用法や半導体物性に関する多くの知識を教えてくださいました。また高田彩未氏、森岡孝之氏、檜原康平氏、中野廣一氏、松田亮氏、Chao-Yu Hung 氏、内藤駿弥氏、大澤惇氏におきましては岡田研究室において快適な研究生活を与えてくださいました。この場をお借りして、皆様方に感謝致します。

私に経済面での援助をしてくださった、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO)、東京大学グローバル COE プログラム、卓越した大学院拠点形成支援補助金、東京大学工学系研究科博士課程研究遂行協力制度に関わっている皆様方に感謝致します。

最後に、10 年間もの長い大学生活という大変貴重な機会を私に与えてくださり、いつも私の心の支えとなって励ましてくださった父、母、姉、祖父、祖母、そして周囲の皆様方に、この場をお借りして深く感謝致します。